



**HAL**  
open science

**Nouveaux composites graphite/sel destinés au stockage de l'énergie thermique à haute température: De l'élaboration au développement de méthodes de caractérisation thermique de matériaux conducteurs orthotropes.**

Zoubir Acem

► **To cite this version:**

Zoubir Acem. Nouveaux composites graphite/sel destinés au stockage de l'énergie thermique à haute température: De l'élaboration au développement de méthodes de caractérisation thermique de matériaux conducteurs orthotropes.. Energie électrique. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2007. Français. NNT: . tel-00263601

**HAL Id: tel-00263601**

**<https://theses.hal.science/tel-00263601>**

Submitted on 12 Mar 2008

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# THÈSE

PRÉSENTÉE À

**L'UNIVERSITÉ BORDEAUX I**

**ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR**

**Par Zoubir ACEM**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

**DOCTEUR**

**SPÉCIALITÉ : MÉCANIQUE & ÉNERGÉTIQUE**

---

**NOUVEAUX COMPOSITES GRAPHITE/SEL DESTINES AU STOCKAGE  
DE L'ENERGIE THERMIQUE A HAUTE TEMPERATURE : DE  
L'ELABORATION AU DEVELOPPEMENT DE METHODES DE  
CARACTERISATION THERMIQUE DE MATERIAUX CONDUCTEURS  
ORTHOTROPES.**

---

*Soutenue le 27 Septembre 2007, devant le jury d'examen*

- Président du jury :	M. BATTAGLIA Jean- Luc	Professeur des Universités, TREFLE Bordeaux
- Rapporteurs :	Mme LUO Lingai, M. MAILLET Denis,	Professeur des Universités, LOCIE Chambéry Professeur des Universités, LEMTA Nancy
- Directeur de thèse :	Mlle PALOMO Elena	Professeur des Universités, TREFLE Bordeaux
- Co-Encadrant :	M. PY Xavier	Professeur des Universités, PROMES Perpignan



*à ma Mère,  
à mon Père,  
à mes frères et sœurs*

# REMERCIEMENTS

Il est temps de remercier ici les causes qui ont donné naissance à ce manuscrit!!! En effet, sans vous, encadrants, permanents, secrétaires, femmes de ménage, doctorants, amis, ennemis, famille, rien de cela n'aurait été possible. Soyez sur d'avoir participé de près ou de très près à l'aboutissement de ce travail de thèse et je tiens donc à sincèrement vous remercier.

## Le jury :

Je tiens à remercier en premier lieu, **Elena Palomo**, Professeur à l'Université de Bordeaux 1, pour m'avoir encadré tout au long de cette thèse. Merci infiniment! Il s'en est passé des choses pendant ces années. Tu as toujours cru en moi même dans les moments les plus difficiles (quand les résultats tardaient à arriver). J'ai beaucoup appris et échangé à tes cotés tant sur le plan humain que scientifique. Je reste admiratif de toute l'énergie et la force que tu mets au service de ta passion. Ton savoir (une partie seulement) est pour moi ce que la chaleur est à nos composites : Ils ont fini à la fois par bien la stocker et à en assurer le transfert...

Un grand merci à **Xavier Py**, Professeur à l'Université de Perpignan. Xavier, je te suis très reconnaissant de « m'avoir mis le pied à l'étrier » dans le monde de la recherche. J'aurais souhaité bénéficier plus de ton savoir et de tes conseils avisés, j'aurais aimé profiter encore plus de ta sympathie et de ton agréable compagnie. J'aspire dans l'avenir à rattraper ce temps perdu !

Je remercie vivement Monsieur **Denis Maillet**, Professeur à l'Institut Nationale Polytechnique de Lorraine de s'être rendu disponible en acceptant d'être rapporteur de ma thèse. Le regard critique, juste et avisé qu'il a porté sur mes travaux ainsi que les heures passées au téléphone ont été très précieuses. Merci également à Madame **Lingai Luo**, Professeur à l'université de Savoie d'avoir accepté d'être rapporteur de ce travail. Malgré le court délai, je vous remercie de l'attention toute particulière que vous avez accordé à mon travail.

Un grand merci à **Jean-Luc Battaglia**, Professeur à l'Université de Bordeaux I, de m'avoir fait l'honneur de présider mon jury de thèse. Merci Jean-Luc pour tes nombreuses recommandations sur le manuscrit.

## Le laboratoire :

Je tiens naturellement à remercier toutes les personnes que j'ai côtoyé au labo... Un merci particulier à Yves Jannot. « Deus ex machina ! » Oui Yves au-delà de l'homme exceptionnel que tu es, je tiens à souligner combien tu as été important pour moi et je n'oublie pas que tu as été là quand tout allait mal (parce qu'il y a toujours un moment où tout va mal). Tu es sans nul doute un homme de science et un expérimentateur brillant mais également le plus grand pédagogue qu'il m'était donné de rencontrer. Ça suffit pour les louanges mais sérieusement je te suis réellement reconnaissant...

Je veux maintenant remercier Sylviane et Muriel : Vous êtes des pièces maitresses dans ce laboratoire. Merci pour votre bonne humeur et d'avoir veillé sur moi (lol)...

Merci à tous les doctorants et doctorantes du laboratoire avec qui j'ai partagé sciences (oui c'est arrivé), délires, repas, soirées et autres guet-apens :

Je tiens d'abord à remercier Docteur Jérôme Lopez. Ouais minot, toi-même tu sais d'où l'on vient. Qu'importe ou non que je change d'équipe à PES tu finis toujours par gagner (soit sur un bug du jeu, soit sur un coup de sifflet hasardeux de l'arbitre ou sur une frappe à la roberto larcos). Alors, mon compagnon de galère laisse moi te dire que plus qu'une partie de PES, j'ai gagné un FRERE !!

Je tiens à remercier Mister Christophe Vallet... Quand je t'ai vu arriver le premier jour, j'ai dit va falloir que je le forme ce jeune. Et au final je n'ai pas eu besoin de t'apprendre grand chose car derrière ta dégaine de premier de la classe se cachait une vielle farouille. On a bien déliré pendant ces années !

Un grand merci à un autre compagnon de tranchée, j'ai nommé Vincent Morisson. Je tiens à te dire que t'es un mec qui à « vachement » d'humour même si ta maman ne sait toujours pas que tu fumes !!! (lol)

Merci à Messieurs Matthieu Bamford et Jean-Luc Dauvergne. Au plus anglais des parisiens et au plus écossais des bordelais... J'ai aimé partager tous ces moments d'insou(science) avec vous...

Merci à la famille Ho Kon Tiat. A Alex, Livia et surtout Vanessa (le rayon de soleil du laboratoire). C'est sûr j'irai en Guyane un jour, il ne saurait en être autrement les frangines...

Merci à : Bérengère (pour m'avoir supporté tous ce temps!), Samuel, Gustavo, Malick, Fabrice (le fantasque), Ciril, Vladimir, Nathalie, Yannick (t'es fait dans quel métal?) et Gertrude, Andje, Raphael, David, Sadoth.

Je tiens également à remercier tous les permanents du laboratoire.

Un grand merci au responsable informatique Frédéric Lapègue et Marian Antos (une blague svp) et aux techniciens, Alain Oschenhofer, Dimitri Jaupart et Paul Laporte, pour toute votre aide et la qualité de votre travail.

Je tiens particulièrement à exprimer un grand merci à Madame Corinne Arvieu, Maître de Conférence à l'I.U.T. de Bordeaux I. Merci de m'avoir aiguillé et conseillé pour mes débuts dans l'enseignement. Ce fut un réel plaisir de travailler à tes cotés...

### La matrice

Ma vie de thésard ne s'est bien entendue pas restreinte au confortable microcosme du laboratoire. Et quand il fallait quelque fois se détacher de la pression de la thèse, j'ai toujours eut la chance d'avoir quelqu'un qui m'attendait quelque part. Mais non ce n'était pas de la chance mais juste mes ami(e)s, et qu'est ce que cela en est d'en avoir !

Je voudrais d'abord remercier Sabrina et Ahlem. Non mais sans déconner mes sœurs, je vous remercierai jamais assez pour avoir hébergé un « parfait inconnu » fraîchement débarqué sur Bordeaux. Je n'oublie pas que vous étiez là pour moi au tout début et j'ai un gros sourire sur le visage rien qu'en repensant à toutes nos aventures. Vous me manquez...

Un grand merci à la déroutante Nadia Nathalie. Je sais que tu m'as toujours soutenu et ta présence à la soutenance m'a fait énormément plaisir. Sache que je te porte dans mon cœur...

Merci aussi à Insaf. Pour tout, tout simplement. Toute cette énergie dans un seul être : passer une double licence, travailler à la Boite à Pizza, faire à manger, sortir avec ses copines, se battre contre la faim en Afrique ou contre le froid au Pôle Nord, revenir faire la vaisselle et regarder la moitié d'un film...Unbelievable !

Il est temps de remercier chaleureusement Sandrine Pincemin. Ma cothésarde ! Tu sais que ce lien nous unis pour la vie.

Un grand merci à Bruno, Nadhir et Julien : Des virées au TRICOLOR les soirs de match au déhanchement ravageur du père Bruno au Torito en passant par une « surconsommation » de football et d'amitié au BEC ou devant une partie de PES.

Je termine avec la famille bordelaise par remercier Badra et Houari. Badra ça ne pouvait pas mieux commencer avec le carton de vaisselle, non ! Et Hou, pfff rien à dire frère tellement il y a à dire depuis Nîmes...

Un grand merci à Noureddine et Malika et à toute la famille Ben Aïssa. Oh nono, frère de galère, ce qu'on a vécu ça ne se raconte pas, ça se vit tout simplement. Il me tarde de voir enfin le petit Mohamed-Yassin...

A Faissal et Warda, à Faissal et Yasmina et à Naoufel et Soraya : Quel honneur cela à été pour moi de témoigner de vos unions respectives ! Je vous en suis éternellement reconnaissant et j'aimerais vous assurer que les liens fraternels qui nous lient sont indéfectibles et irrévocables (c'est à dire même avec un câble tu peux pas...)

Je veux également remercier : Hakim, Mourad, Bena, Djamel, Mahmoud, Kamel, Kamal, Smail, Karim...

J'ai également une pensée pour Yasmina et ses soeurs, Fuzia, Nezli, Jenifer, Céline, Leila et Nassima (passe le bonjour à tes amis)...

Au phénoménal Brahim dit « Skilach ». Franchement frère il n'y a pas beaucoup de mec comme toi malheureusement.

Un grand merci à Caroline Kern. Tu sais pourquoi donc pas besoin de rajouter quoi que ce soit.

Et je terminerai par remercier Jaoued (C'est pas que je sais pas écrire, c'est que je sais pas quoi dire et à l'arrivée ça sonne faux !). Je ne compte mais plus toutes nos escapades les unes plus rocambolesques que les autres... Cela m'a beaucoup touché de te voir à la soutenance. Et t'inquiète on a pas raté notre tour à la course aux amours, on a juste crevé sur la ligne de départ !

J'ai une pensée pour Omar, Dalila, Nejib, Mohamed, Khalid et Jaoued. Qu'Allah (s.w.t) vous préserve et vous garde auprès de Lui.

## La famille

The last but not the least : Je tiens à remercier maintenant ceux qui comptent le plus pour moi : Ma famille, qui ne cesse de s'agrandir d'ailleurs avec l'arrivée des neveux et nièces pour notre plus grand bonheur.

Donc Merci à mon petit frère Brahim : Oh minot reste souple. Je suis fier de toi et je fais tout pour être un bon exemple. Même si aujourd'hui tu as aussi beaucoup à m'apprendre ! A mes grands frères Mohamed et Adda : Quels phénomènes ces deux là ! N'en doutez pas vous comptez beaucoup pour moi et je chercherai toujours à ce que vous soyez fier de moi. Un grand merci à Maaar, le beau frère. C'est impressionnant tout ce que tu fais, J'ai beaucoup pris exemple sur ton envie et ta détermination à aller au bout des choses... Une pensée également pour ma belle-sœur Ratiba que j'apprécie beaucoup malgré le peu de temps passé ensemble. Mais on a le temps...

Un incommensurable merci à mes sœurs Yamina et Hafida. Je sais que vous êtes fier de moi, mais je le suis encore plus de vous. Vous assurez les frangines ! Vous êtes toujours là pour moi et j'espère l'être assez pour vous.

A mes petits neveux et nièces : Mehdi, Yliès, Yassin, Manelle, Selma, Djenna, Mohamed, Lahna et Inès...

Un simple merci à mes parents serait trop désuet et il n'y a pas de mots pour exprimer ce que je ressens. Merci, à mon père, d'avoir toujours su me donner les moyens d'arriver à mes objectifs.

Enfin, il est temps de remercier celle sans qui rien n'aurait été possible, j'ai nommé ma mère. Merci maman d'avoir été constamment derrière moi et derrière nous. Ma réussite est la tienne, je te dois tout et tellement encore. C'est par et pour toi que je suis comme ça...

# Préambule

Ce travail de thèse s'inscrit dans les projets de recherche HTPSTOCK et DISTOR. Il est scindé en deux parties distinctes et indépendantes.

La première partie s'attache à répondre aux premiers objectifs fixés dans le cadre de ces deux projets. Elle présente les travaux relatifs à l'élaboration et la caractérisation thermique de nouveaux matériaux composites graphite/sel. Une attention particulière est portée sur l'élaboration de ces composites et notamment du point de vue de la qualité et de la reproductibilité. Le travail de caractérisation est effectué dans le but d'apprécier les impacts du graphite sur les propriétés thermiques des composites élaborés. Cette tâche s'est avérée quelque peu délicate notamment pour les matériaux élaborés par compression uniaxiale, matériaux présentant une forte orthotropie.

La seconde partie de ce travail est donc consacrée aux développements de méthodes de caractérisation de matériaux conducteurs orthotropes. Les moyens de caractérisation existants, conçus pour l'étude de matériaux isotropes, permettent bien entendu de caractériser les matériaux orthotropes, mais nécessitent néanmoins deux mesures distinctes. Quand le degré d'orthotropie est important, deux échantillons de tailles différentes doivent être élaborés. Cela peut s'avérer d'autant plus fastidieux lorsque la reproductibilité des échantillons est délicate, comme c'est le cas des matériaux étudiés dans cette thèse. C'est pourquoi nous nous sommes attachés à développer et adapter les moyens de caractérisation existants afin de permettre la caractérisation thermique complète d'un matériau conducteur orthotrope au moyen d'une seule mesure sur un seul échantillon



**PARTIE 1 : NOUVEAUX MATERIAUX COMPOSITES GRAPHITE/SEL DESTINES  
AU STOCKAGE DE L'ENERGIE THERMIQUE A HAUTE TEMPERATURE**

<b>NOMENCLATURE .....</b>	<b>9</b>
<b>CHAPITRE 1: INTRODUCTION .....</b>	<b>11</b>
1.1. Rappel des principes de stockage et des milieux de stockage associés .....	12
1.2. Contexte de ce travail : les projets DISTOR et HTP-STOCK.....	14
1.3. Objectifs de ce travail et contenu.....	15
<b>CHAPITRE 2: PRESENTATION DES MATIERES PREMIERES ET DES COMPOSITES. 17</b>	
<b>2.1. Les matières premières .....</b>	<b>18</b>
2.1.1. Le Graphite Naturel Expansé (GNE) .....	18
2.1.2. Le Timrex <sup>®</sup> SFG .....	22
2.1.3. L'eutectique Nitrate de Sodium/Nitrate de Potassium .....	22
<b>2.2. Elaboration des composites par dispersion .....</b>	<b>23</b>
<b>2.3. Elaboration par compression uniaxiale .....</b>	<b>26</b>
<b>2.4. Autres moyens d'élaboration.....</b>	<b>32</b>
<b>2.5. Conclusion .....</b>	<b>33</b>
<b>CHAPITRE 3: PROPRIETES THERMIQUES DES COMPOSITES ELABORES PAR DISPERSION.....</b>	<b>35</b>
<b>3.1. Les matériaux étudiés et leur caractérisation texturale.....</b>	<b>36</b>
<b>3.2. Qualité des échantillons et des mesures effectuées.....</b>	<b>37</b>
3.2.1. Rappel de la méthode de mesure/estimation des propriétés thermiques des échantillons.....	38
3.2.2. Qualité des échantillons : homogénéité et porosité.....	39
3.2.3. Qualité des mesures de conductivité et d'effusivité thermiques .....	41
<b>3.3. Effet du graphite sur les propriétés thermiques des composites NaNO<sub>3</sub>/KNO<sub>3</sub>-SFG .....</b>	<b>43</b>
3.3.1. Choix des paramètres relatifs à la microstructure .....	44

3.3.2. Effet de la quantité de graphite ajoutée .....	45
3.3.3. Effet de la taille des particules de graphite.....	49
<b>3.4. Modélisation des propriétés thermiques de composites NaNO<sub>3</sub>/KNO<sub>3</sub> – SFG.....</b>	<b>51</b>
3.4.1. La théorie de la percolation et des fonctions d'échelle .....	52
3.4.2. Les théories des milieux effectifs de Bruggeman.....	54
3.4.3. La théorie des milieux effectifs généralisés .....	55
3.4.4. Application de la théorie des milieux effectifs généralisés aux composites SFG/sel.....	57
<b>3.5. Conclusion .....</b>	<b>60</b>
 <b>CHAPITRE 4: PROPRIETES THERMIQUES DES COMPOSITES ELABORES PAR COMPRESSION .....</b>	 <b>61</b>
<b>4.1. Présentation des matériaux étudiés et de leurs caractéristiques texturales.....</b>	<b>62</b>
<b>4.2. Qualité des échantillons et des estimations des propriétés thermiques.....</b>	<b>64</b>
4.2.1. Qualité des mesures des propriétés thermiques.....	64
4.2.2. Qualité des échantillons .....	65
<b>4.3. Propriétés thermiques des composites NaNO<sub>3</sub>/KNO<sub>3</sub> –GNE .....</b>	<b>68</b>
4.3.1. Choix des paramètres microstructuraux appropriés. ....	70
4.3.2. Propriétés thermiques axiales des composites élaborés par compression uniaxiale.....	71
4.3.3. Propriétés thermiques radiales des composites élaborés par compression uniaxiale. ....	73
4.3.4. Capacité thermique et chaleur massique des composites élaborés par compression uniaxiale. ....	76
4.3.5. Bilan des propriétés thermiques des composites élaborés par compression uniaxiale.....	77
<b>4.4. Modélisation des composites .....</b>	<b>79</b>
<b>4.5. Conclusion .....</b>	<b>85</b>
 <b>SYNTHESE, CONCLUSION ET PERSPECTIVES .....</b>	 <b>87</b>
 <b>NOMENCLATURE .....</b>	 <b>95</b>
 <b>CHAPITRE 5: INTRODUCTION ET OBJECTIFS. ....</b>	 <b>97</b>
<b>5.1. Méthodes de caractérisation thermique de matériaux couramment utilisées.....</b>	<b>98</b>
<b>5.2. Méthodes dynamiques à sonde plane.....</b>	<b>100</b>
5.2.1. Evolutions de la méthode du plan chaud.....	100
5.2.2. La méthode du disque chaud.....	102

<b>5.3. Adaptation aux spécificités des matériaux étudiés .....</b>	<b>103</b>
---	------------

## **CHAPITRE 6: ANALYSE DES METHODES DE TYPE SONDE PLANE**

<b>CHAUFFANTE – CAS DE DISPOSITIFS IDEAUX.....</b>	<b>107</b>
--	------------

<b>6.1. Présentation des dispositifs et des équations de conservation de l'énergie .....</b>	<b>108</b>
--	------------

<b>6.2. Démarche générale de résolution des équations de conservation .....</b>	<b>111</b>
---	------------

<b>6.3. Analyse des dispositifs de type plan chaud.....</b>	<b>113</b>
---	------------

6.3.1. Plan chaud à $0 \leq z \leq L$ & $0 \leq r < \infty$ .....	113
---	-----

6.3.2. Plan chaud à $0 \leq z \leq L$ & $0 \leq r \leq R$ et isolation latérale parfaite .....	115
--	-----

6.3.3. Plan chaud à $0 \leq z \leq L$ & $0 \leq r \leq R$ et des conditions aux limites de type mixte sur $r = R$ .....	117
---	-----

6.3.4. Une méthode simple pour guider le choix des conditions expérimentales.....	122
---	-----

<b>6.4. Analyse des dispositifs de type disque chaud .....</b>	<b>126</b>
--	------------

6.4.1. Disque chaud à $0 \leq z \leq L$ & $0 \leq r < \infty$ .....	127
---	-----

6.4.2. Disque chaud à $0 \leq z \leq L$ & $0 \leq r \leq R$ et isolation latérale parfaite .....	127
--	-----

6.4.3. Disque chaud à $0 \leq z \leq L$ & $0 \leq r \leq R$ et des conditions aux limites de type mixte à $r = R$ .....	134
---	-----

6.4.4. Une méthode simple pour guider le choix des conditions expérimentales.....	137
---	-----

<b>6.5. Conclusion .....</b>	<b>142</b>
------------------------------	------------

## **CHAPITRE 7: ANALYSE DES METHODES DE TYPE SONDE PLANE**

<b>CHAUFFANTE – CAS DE DISPOSITIFS REELS .....</b>	<b>143</b>
--	------------

<b>7.1. Présentation des dispositifs et des équations de conservation de l'énergie .....</b>	<b>144</b>
--	------------

<b>7.2. Formulation modale du problème .....</b>	<b>146</b>
--	------------

7.2.1. Rappel sur le principe de la méthode modale.....	147
---	-----

7.2.2. Modèles modaux des composants .....	149
--	-----

7.2.3. Modèle du dispositif.....	154
----------------------------------	-----

<b>7.3. Le modèle modale du dispositif en pratique .....</b>	<b>156</b>
--	------------

7.3.1. Etape n°1.- Calculs préliminaires.....	156
---	-----

7.3.2. Etape n°2.- Choix des éléments propres à garder et calcul des fonctions propres aux frontières de couplage .....	157
---	-----

7.3.3. Etape n°3.- Construction des modèles modaux locaux .....	158
---	-----

7.3.4. Etape n°4.- Génération des équations de couplage .....	159
---	-----

7.3.5. Etape n°5.- Obtention du modèle global du dispositif .....	160
---	-----

7.3.6. Récapitulatif des avantages de la démarche de modélisation adoptée .....	162
---	-----

<b>7.4. Analyse du dispositif de type plan chaud.....</b>	<b>164</b>
7.4.1. Les échantillons étudiés et les propriétés thermiques des éléments fixes du dispositif.....	164
7.4.2. Trait caractéristiques de la réponse thermique du dispositif .....	166
7.4.3. Analyse de sensibilité paramétrique.....	168
<b>7.5. Analyse du dispositif de type disque chaud .....</b>	<b>170</b>
7.5.1. Les échantillons étudiés et les propriétés thermiques des éléments fixes du dispositif.....	171
7.5.2. Traits caractéristiques de la réponse thermique du dispositif.....	172
7.5.3. Analyse de sensibilité paramétrique.....	172
<b>7.6. Conclusion .....</b>	<b>175</b>
<b>CHAPITRE 8: STRATEGIES D'ESTIMATION DES PROPRIETES THERMIQUES ET APPLICATIONS .....</b>	<b>177</b>
<b>8.1. Description des stratégies d'estimation et de la procédure de validation.....</b>	<b>178</b>
8.1.1. Description des stratégies d'estimation pour les dispositifs de type plan chaud .....	178
8.1.2. Description des stratégies d'estimation pour les dispositifs de type disque chaud.....	181
8.1.3. Procédure de validation des stratégies d'estimation.....	184
<b>8.2. Estimation de paramètres par la méthode de type plan chaud.....</b>	<b>185</b>
8.2.1. Application des stratégies 1T et 2T sur des mesures de qualité moyenne.....	185
8.2.2. Analyse de l'effet du bruit de mesure et des paramètres de la sonde sur la qualité des estimations .....	190
<b>8.3. Estimation de paramètres par la méthode de type disque chaud.....</b>	<b>191</b>
8.3.1. Application sur des mesures de bonne qualité .....	191
8.3.2. Analyse de l'effet du bruit de mesure et des paramètres de la sonde sur la qualité des estimations .....	195
<b>8.4. Exemple d'application sur des mesures réelles .....</b>	<b>197</b>
8.4.1. Présentation des mesures et analyse de cohérence .....	197
8.4.2. Caractérisation des matériaux .....	201
<b>8.5. Conclusion .....</b>	<b>204</b>
<b>CONCLUSION ET PERSPECTIVES .....</b>	<b>205</b>
<b>RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....</b>	<b>209</b>
<b>ANNEXE.....</b>	<b>215</b>





*PARTIE 1 :*

***NOUVEAUX MATERIAUX COMPOSITES  
GRAPHITE/SEL DESTINES AU STOCKAGE  
DE L'ENERGIE THERMIQUE A HAUTE  
TEMPERATURE***



# Nomenclature

<b>Symboles</b>		
$\lambda$	Conductivité thermique	$W.m^{-1}.K^{-1}$
$\rho c_p$	Capacité calorifique de l'échantillon à pression constante	$J.m^{-3}.K^{-1}$
$E$	Effusivité thermique	$J.m^{-2}.K^{-1}.s^{-1/2}$
$\rho$	densité apparente	$kg.m^{-3}$
$\phi$	fraction volumique de GNE	(-)
$\varepsilon$	porosité	(-)
$w$	teneur en masse de GNE	(%)
$V$	volume	$m^3$
$m$	masse	$kg$
<b>Indices</b>		
s	sel	
as	apparente sel	
g	graphite	
ag	apparente graphite SFG et Matrice de GNE	
pag	apparente de la « paroi » de GNE	
l	low	
h	high	
rd	Direction radiale	
ax	Direction axiale	



# ***Chapitre 1:* INTRODUCTION**

Selon le ministère de l'industrie, la consommation de chaleur est le premier poste de consommation finale d'énergie en France. En 2004, sur un total de 161 Mtep de consommation finale d'énergie, un peu plus de la moitié (85 Mtep) a été consommée sous forme de chaleur. Ainsi que ce soit dans le secteur industriel (récupération de rejets thermiques, cogénération), ou dans celui de la production d'électricité (filières classiques ou renouvelables), le stockage d'énergie thermique à haute température (SEHT) ( $>120^{\circ}\text{C}$ ) offre un potentiel d'économie d'énergie (réduction de la consommation d'énergie primaire, efficacité énergétique accrue) et d'amélioration de la rentabilité économique significatif. Par exemple, des études réalisées récemment aux USA (2000) et au Royaume Uni [1] sur l'utilisation du stockage d'énergie comme moyen de récupérer des rejets thermiques dans l'industrie, signalent un potentiel d'économie de  $10^8$  MJ/an et  $3,9 \times 10^7$  MJ/an, respectivement, dans les principales branches industrielles de ces deux pays.

Malgré les enjeux, rares sont cependant les exemples d'applications industrielles existantes. L'obstacle principal à l'utilisation massive du stockage d'énergie à haute température est de nature économique. En effet, les coûts d'investissement liés à ces technologies restent élevés et entraînent des systèmes de faible rentabilité. Pour réduire ces coûts, des efforts de recherche visant le développement de matériaux de stockage à bas coûts et de longue durée, des échangeurs à efficacité accrue, des architectures de système adéquates et des stratégies performantes d'intégration du système de stockage dans les procédés, ont été identifiés. Ce travail se place dans le volet matériaux.

## 1.1. Rappel des principes de stockage et des milieux de stockage associés

Les principes de stockage de l'énergie thermique sont au nombre de trois si l'on décompte les principes non renversables (ex. : oxydation). Il s'agit du stockage par chaleur sensible, du stockage par chaleur latente et du stockage thermo-chimique.

Le stockage par chaleur sensible consiste à mettre en contact un corps à haute température (ex. : fluide caloporteur) avec le milieu, fluide ou solide, support du stockage et qui se trouve à température plus basse. Le résultat de cette opération est l'augmentation de la température du milieu stockant. Huiles synthétiques, vapeur d'eau sous pression, sels fondus sans changement de phase, céramiques et béton sont les milieux généralement utilisés pour stocker de l'énergie thermique à haute température.

Le stockage par chaleur latente est lié au changement d'état des corps : solide-liquide, solide-gaz, liquide-gaz ou encore solide-solide. Ces transformations se produisent généralement à température et pression constantes (pour les corps purs) et mettent en jeu des quantités d'énergie thermique considérables ( $> 100 \text{ kJ.kg}^{-1}$ ). Par rapport au stockage par chaleur sensible, le stockage par chaleur latente permet de stocker de plus grandes quantités d'énergie avec des masses et des variations de température bien plus faibles. On peut s'attendre toutefois à ce qu'il demande une technologie plus élaborée. A haute température, les matériaux à changement de phase les plus couramment utilisés sont les métaux et les sels (transformations liquide-solide). Nous y reviendrons plus tard.

Le stockage thermochimique repose sur l'utilisation d'une réaction chimique endo/exothermique. En fournissant de l'énergie, on déplace l'équilibre de la réaction vers la droite et par contact avec une source à température plus basse, on le déplace vers la gauche en libérant l'énergie de réaction. Les enthalpies de réaction sont relativement importantes ( $> 100 \text{ kJ.mol}^{-1}$ ), mais le déplacement d'équilibre est généralement insuffisant. C'est pourquoi ce type de stockage est resté pendant longtemps au stade du laboratoire. Les travaux [2,3] actuels portent notamment sur le stockage par des réactions solide/gaz. L'horizon de développement visé à l'échelle de laboratoire est de 10 – 15 ans. Des applications à l'échelle industrielle sont envisageables à l'horizon 2030.

Des trois principes, celui de stockage par chaleur latente semble donc le mieux placé pour répondre à court et moyen terme aux besoins de stockage d'énergie à haute température. Il est « a priori » adapté aux fortes contraintes de compacité, de puissance et de température de travail qu'imposent les applications des secteurs ciblés. Trois catégories de matériaux peuvent être envisagés pour ce faire :

- Les composés organiques ayant une température de fusion entre  $200^\circ\text{C}$  et  $400^\circ\text{C}$  sont relativement peu nombreux. D'une manière générale, ces produits sont des corps inflammables, avec des pressions de vapeur importantes, des points d'éclair relativement bas, des conductivités thermiques faibles ( $\sim 0,1 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) et ils sont chimiquement instables. Malgré leurs chaleurs latentes élevées, tous les inconvénients énumérés précédemment en font de mauvais candidats pour le stockage d'énergie à haute température.
- Les métaux et leurs alliages possèdent de faibles enthalpies de fusion par unité de masse ( $\sim 50 \text{ J/g}$ ), mais des fortes chaleurs de fusion par unité de volume puisque les masses volumiques des métaux sont très élevées ( $\sim 10000 \text{ kg.m}^{-3}$ ). Ils se caractérisent également par des conductivités thermiques élevées, des faibles chaleurs spécifiques, des pressions de vapeur négligeables et une grande stabilité thermique (sauf si corrosion). Malgré ces caractéristiques intéressantes, le prix élevé des métaux peut freiner leur utilisation comme milieu support de stockage.
- Les sels et les mélanges de sels potentiellement utilisables pour le SEHT sont abondants. Ils possèdent pour la plupart des densités énergétiques supérieures à  $200 \text{ MJ.m}^{-3}$ , pouvant même prendre des valeurs d'environ  $2000 \text{ MJ.m}^{-3}$  pour des températures de fusion proches de  $1000^\circ\text{C}$ . De plus, les prix des sels commerciaux se situent souvent sous la barre de  $0.015 \text{ €/kJ}$ . Par contre, leur conductivité thermique est en général assez faible ( $\sim 0,4$  à  $2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  selon les familles de sels [4]).

Donc parmi les MCP (Matériaux à Changement de Phase) potentiellement utilisables, les sels paraissent être des candidats intéressants pour des raisons de coût et de densités énergétiques. Cependant, ils souffrent en général d'une faible conductivité thermique qui pourrait être rédhibitoire pour des applications nécessitant de fortes puissances de stockage/déstockage. L'amélioration des propriétés de transferts des sels (augmentation de la conductivité thermique) est donc nécessaire.

## 1.2. Contexte de ce travail : les projets DISTOR et HTP-STOCK.

Ce travail de thèse s'est déroulé dans le cadre des projets DISTOR (6<sup>ème</sup> PCRD ; 2004 – 2007) et HTP-STOCK (Programme Energie CNRS ; 2003 – 2005). Le projet européen DISTOR vise à concevoir des systèmes de stockage d'énergie pour des applications de conversion d'énergie solaire en électricité s'appuyant sur des capteurs cylindro-paraboliques utilisant la technologie de génération directe de vapeur. Un des systèmes envisagés repose sur utilisation de matériaux à changement de phase (MCP) dans la gamme de température comprise entre 200°C et 300°C. Quant au projet HTP-STOCK, l'objectif était de concevoir, d'élaborer et d'étudier de nouveaux matériaux à changement de phase, alliant les capacités de stockage d'énergie par chaleur latente des sels avec les propriétés conductrices du graphite en proposant des solutions sur la gamme de température comprise entre 200°C et 600°C.

A *basse température*, plusieurs possibilités d'amélioration des propriétés thermiques des MCP ont été étudiées par le passé. En utilisant des supports métalliques comme des additifs en aluminium ou en cuivre [5,6,7], des mousses métalliques [8,9] ou des systèmes d'ailettes [5,9,10,11,12], il a été démontré que le temps de charge ou de décharge du système de stockage utilisant ce type de matériaux était significativement réduit. Cependant l'utilisation de matériaux métalliques augmente la masse et le coût du système de stockage. De plus des problèmes de corrosion peuvent apparaître avec l'utilisation de sels comme MCP. Les cires de paraffine incorporées dans des structures poreuses, comme les catalyseurs siliceux [13] ou le charbon actif [14], sont des alternatives intéressantes car elles possèdent de faibles densités. D'autres auteurs ont proposé des techniques d'amélioration de conductivité basées sur l'ajout de graphite [15,16] et des mousses de graphite saturées en MCP [17,18,19]. Plus récemment, les fibres de carbone [20,21] et nanofibres [22,23,24] ont prouvé leurs efficacités pour augmenter les propriétés de transfert des MCP à basse température.

A *haute température*, en raison de sa résistance à la corrosion et aux attaques chimiques, de sa forte conductivité thermique et de sa faible masse volumique, le graphite s'est imposé comme moyen d'augmenter la conductivité thermique des sels dans le cadre des deux projets cités. Des études portant sur l'élaboration, sur la caractérisation thermique et thermodynamique, et sur le potentiel de stockage offert par les composites graphite/sel, ont été menées.

Le laboratoire TREFLE a été fortement impliqué dans ces deux projets, notamment au travers de trois thèses. La première (HTP-STOCK), réalisée en collaboration avec le laboratoire PROMES, est l'objet de ce document et traite de l'élaboration et de la caractérisation thermique des composites graphite/sel. La deuxième (HTP-STOCK), réalisée par Jérôme LOPEZ, concerne l'étude et la caractérisation des propriétés de transition de phase du sel au sein des composites. Enfin, Vincent MORISSON est l'auteur de la troisième thèse (DISTOR) qui traite de la compréhension et de la modélisation/simulation des transferts thermiques au sein de ces matériaux.

### 1.3. Objectifs de ce travail et contenu.

L'objectif principal de ce travail de thèse est la caractérisation thermique des matériaux composites graphite/sel. La compréhension des effets de la méthode et des paramètres d'élaboration, qui déterminent la microstructure de ces matériaux, était notre deuxième objectif.

Le chapitre 1 du document présente d'abord les matières premières utilisées. Il s'agit pour le sel du mélange eutectique  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  (50%<sub>mol</sub>) et pour le graphite du graphite naturel expansé (GNE) et du graphite synthétique Timrex<sup>®</sup> SFG. On décrit ensuite les différentes voies d'élaboration des composites étudiés. On retrouve essentiellement la dispersion de particules de graphite synthétique dans du sel fondu et la compression uniaxiale à froid d'un mélange de graphite naturel expansé et de sel en poudre.

Le deuxième chapitre est dédié à l'étude des matériaux élaborés par dispersion de graphite dans le sel. Après un bref rappel de la méthode de caractérisation des propriétés thermiques, nous analysons la qualité des matériaux élaborés et des mesures effectuées. Sont présentés ensuite les résultats des mesures de propriétés thermiques (conductivité, effusivité, capacité et chaleurs massiques). Ces résultats permettent entre autres d'évaluer l'effet de la quantité ainsi que celui de la taille des particules de SFG sur les propriétés thermiques effectives des matériaux graphite/sel. Afin de mieux comprendre les observations effectuées, un travail de modélisation est également entrepris.

L'étude des propriétés thermiques des matériaux  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  – GNE élaborés par compression uniaxiale est réalisée dans le chapitre 3. Comme pour les matériaux élaborés par dispersion, nous proposons une analyse préliminaire de la qualité des résultats des mesures et des échantillons. Les propriétés thermiques des composites GNE/sel sont ensuite présentés et comparés aux valeurs disponibles dans la littérature ainsi qu'aux propriétés des matériaux élaborés par compression isostatique dans le cadre du projet DISTOR. On y retrouve également une étude de modélisation qui permet de mieux se rendre compte de l'effet de la quantité du GNE et des modifications structurelles causées par le sel (tortuosité) sur les propriétés effectives de transferts des matériaux étudiés.

Enfin le chapitre 4 propose une synthèse des résultats à travers une étude comparative des performances des différents composites étudiés. Un travail de simulation de charge/décharge d'un système de stockage à échangeur à tubes, permet enfin d'estimer la réduction des coûts d'investissement engendrée par leurs utilisations.



## **Chapitre 2: Présentation des matières premières et des composites.**

*Ce chapitre décrit les matières premières constituant les matériaux composites étudiés, ainsi que les méthodes d'élaboration adoptées. La première section présente donc les types de graphite utilisés : le graphite naturel expansé (GNE) et le Timrex<sup>®</sup> SFG. Elle fournit également quelques renseignements utiles sur le matériau à changement de phase (MCP) : le mélange nitrate de potassium – nitrate de sodium ( $KNO_3 - NaNO_3$ ) en proportion eutectique.*

*Les deux méthodes d'élaboration étudiées dans le cadre de cette thèse sont présentées dans les deux sections suivantes. La section 2 décrit l'élaboration dite par dispersion, qui consiste à mélanger du graphite synthétique Timrex<sup>®</sup> SFG avec le MCP à l'état liquide ; tandis que la section 3 présente l'élaboration dite par compression uniaxiale, où l'on vient compresser des vermicules de GNE mélangés au sel en poudre. D'autres voies d'élaboration testées dans le cadre des projets DISTOR et HTP-STOCK sont brièvement décrites dans la dernière section.*

## 2.1. Les matières premières

Le graphite naturel expansé (GNE) et le graphite synthétique Timrex<sup>®</sup> SFG sont les deux types de graphite utilisés dans le cadre de cette thèse pour améliorer la conductivité thermique du mélange NaNO<sub>3</sub>/KNO<sub>3</sub> en proportion eutectique. Graphites et sel sont ici introduits.

### 2.1.1. Le Graphite Naturel Expansé (GNE)

Le GNE est obtenu par exfoliation d'un Composé d'Insertion Graphité (CIG) obtenu par intercalation de composés entre les plans de graphène constituant le graphite. La figure 2.1 présente respectivement un schéma descriptif de la structure en feuillet du graphite et des images MEB de graphite naturel, de CIG et de GNE.

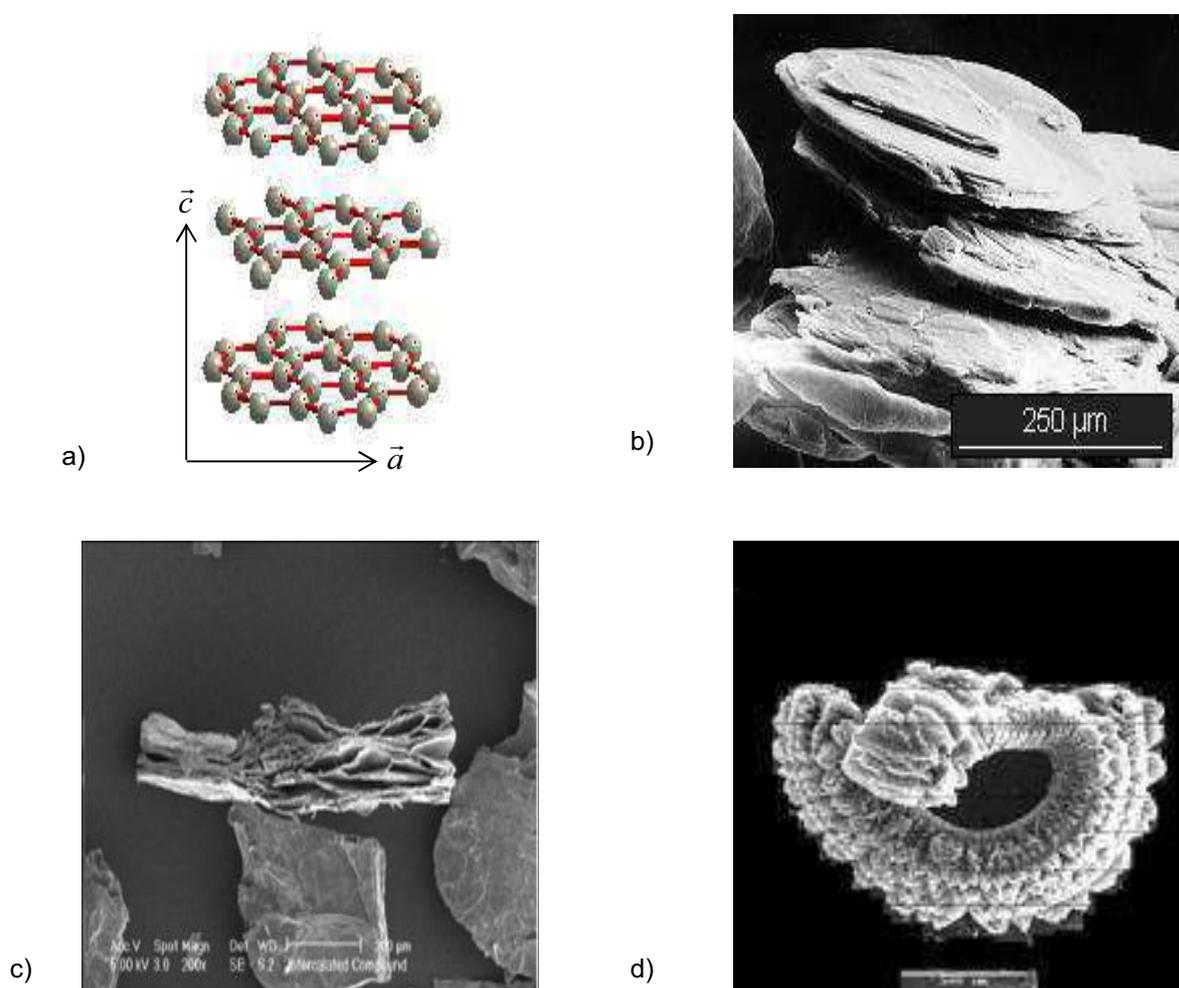


Figure 2.1 : a) Structure du graphite ; b) Graphite naturel (SGL Carbon Group) ; c) CIG (Mills et al.[19]) ; d) Vermicule de GNE.

### **Le Graphite Naturel**

Le graphite naturel est la variété allotropique la plus stable et la plus répandue du carbone. Sa structure (figure 2.1.a) est constituée de feuillets hexagonaux non compacts, nommés graphènes, régulièrement espacés d'environ 3,36 Å le long de la direction de leur normale (axe  $\vec{c}$ ). Ces plans de graphènes sont maintenus par de faibles liaisons de type Van der Waals qui rendent possible l'intercalation de composés. Sur un même plan, chaque atome de carbone forme de fortes liaisons covalentes, d'une longueur de 1,42 Å, avec trois autres atomes de carbone pour former une structure hexagonale. Les tailles de particule du graphite (figure 2.1.b) sont de l'ordre de 400  $\mu\text{m}$  pour une densité de 2,25  $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ .

En raison de sa structure en feuillet, toutes les propriétés physiques du graphite sont anisotropes. En particulier, la conductivité thermique est très différente dans le plan des feuillets et dans la direction perpendiculaire. En fait, la conductivité thermique d'un seul cristal de graphite varie de 10  $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  (axe  $\vec{c}$ ) à 2000  $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  (axe  $\vec{a}$ ). Nous verrons par la suite que cette spécificité du graphite est, avec l'effet de la compression uniaxiale, à l'origine de l'anisotropie de la conductivité thermique des composites GNE-sels.

### **Le Composé d'Insertion Graphité**

Les faibles liaisons entre les feuillets de graphènes laissent un espace pouvant accueillir des réactifs chimiques de toutes sortes. Le mécanisme de la réaction d'intercalation est bien décrit par Hérold et al. [25] ainsi que par Kinoshita [26]. On rappelle ici les étapes conduisant à l'intercalation d'un composé au sein de l'espace inter-feuillet aussi appelé « lacune de Van der Waals ». Tout d'abord, rappelons que par son caractère amphotère le graphite peut accueillir aussi bien des réactifs donneurs qu'accepteurs d'électrons. Une première étape regroupe la vaporisation et l'ionisation du réactif. L'étape suivante consiste en un travail d'écartement des feuillets. Enfin, on assiste à une dernière phase d'occupation par le réactif de l'espace vacant. Cette ultime étape génère des interactions de type électrostatique entre d'une part les espèces chargées et les feuillets de graphène, chargés négativement, et d'autres parts entre les espèces intercalées. La figure 2.1.c montre un cliché MEB d'un CIG après avoir été lavé et séché. Cette photo permet de définir la notion de stade, qui correspond au nombre de feuillets de graphènes inoccupés entre deux feuillets intercalés successifs. Ainsi, un CIG de stade 1 verra tous ses feuillets occupés.

Les CIG utilisés sont élaborés en trempant les flakes de graphite dans un bain d'acide sulfurique ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) en présence d'acide nitrique ( $\text{HNO}_3$ ). L'acide nitrique permet l'ouverture des feuillets grâce à son attaque oxydante. Les CIG obtenus sont ensuite lavés et séchés et sont prêts à être exfoliés. Les particules de CIG ont une largeur similaire aux particules de graphite d'origine et une longueur de l'ordre du dixième de millimètre.

Inagaki [27] rappelle les domaines d'applications utilisant ou susceptibles d'utiliser les CIG. L'auteur regroupe ces applications selon cinq types de fonction que les CIG peuvent assurer. Ainsi, les CIG peuvent être employés pour leur grande conductivité électrique, comme électrodes pour batterie, comme catalyseur de réaction en synthèse organique, comme matériaux pour le stockage et la séparation d'isotope du  $\text{H}_2$  et aussi pour le stockage d'énergie thermique par intercalation/dé-

intercalation d'ammoniac au sein d'un CIG formé à partir de chlorure métallique. En ce qui nous concerne, les CIG sont utilisés comme précurseurs pour l'élaboration du GNE.

### **Elaboration du Graphite Naturel Expansé (GNE)**

Le GNE est obtenu par exfoliation des particules de CIG [28,29]. Cette opération s'effectue le plus généralement en soumettant les pétales de CIG à un choc thermique. La volatilisation soudaine des composés intercalés induit une considérable expansion des plaquettes initiales le long de l'axe  $\vec{c}$ . On obtient des vermicules (figure 2.1.d) semblables à des accordéons extrêmement poreux.

Le GNE (Graphite Naturel Expansé) ainsi obtenu présente donc l'aspect d'un « ver » dont la longueur, atteignant les quelques millimètres, est entre 15 à 20 fois plus grande que le diamètre. Il se caractérise par une faible densité (de 1 à 15 Kg/m<sup>3</sup>), une grande porosité (~ 99%) et des surfaces spécifiques très importantes (~40-60 m<sup>2</sup>/g). Le GNE utilisé pendant la thèse a été fourni par le laboratoire PROMES à Perpignan et par le groupe SGL CARBON en Allemagne.

Beaucoup d'auteurs se sont penchés sur ce matériau si particulier qu'est le GNE, que ce soit pour le décrire, pour comprendre les phénomènes régissant sa formation ou pour promouvoir son utilisation dans des domaines nombreux et variés. Celzard et al. [30] décrivent la structure du vermicule selon trois échelles différentes : celle du vermicule lui-même (Fig. 2.1d), celles des « ballons » aplatis qui constituent le vermicule (Fig. 2.2a et 2.2b) et celle des feuilles élémentaires de graphite (Fig. 2.2c et 2.2d). A la plus petite échelle, les vermicules de GNE possèdent un réseau structurel en nid d'abeille irrégulier et aplani rappelant la structure du graphite primitif.

Des études ont été menées par certains auteurs pour comprendre les phénomènes et les paramètres influençant la formation du GNE. Yoshida et al. [31] ont montré, par exemple, que la structure du graphite primitif pouvait agir fortement sur le processus d'exfoliation ainsi que sur la morphologie du GNE résultant. Ainsi, une différence remarquable dans la morphologie a été observée entre les particules de GNE préparées à partir de CIG de type accepteur (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, FeCl<sub>3</sub>) et ceux de type donneur (Na-THF, Co-THF, K-THF). Ceux préparés à partir de CIG accepteur sont formés de larges « ballons » effondrés d'épaisseur de 200-300 µm et de largeur identique à celle des flakes du graphite d'origine. Ceux préparés à partir de CIG donneur sont composés de plusieurs minuscules ballons d'épaisseur 20 – 50 µm et d'environ 50 µm de large.

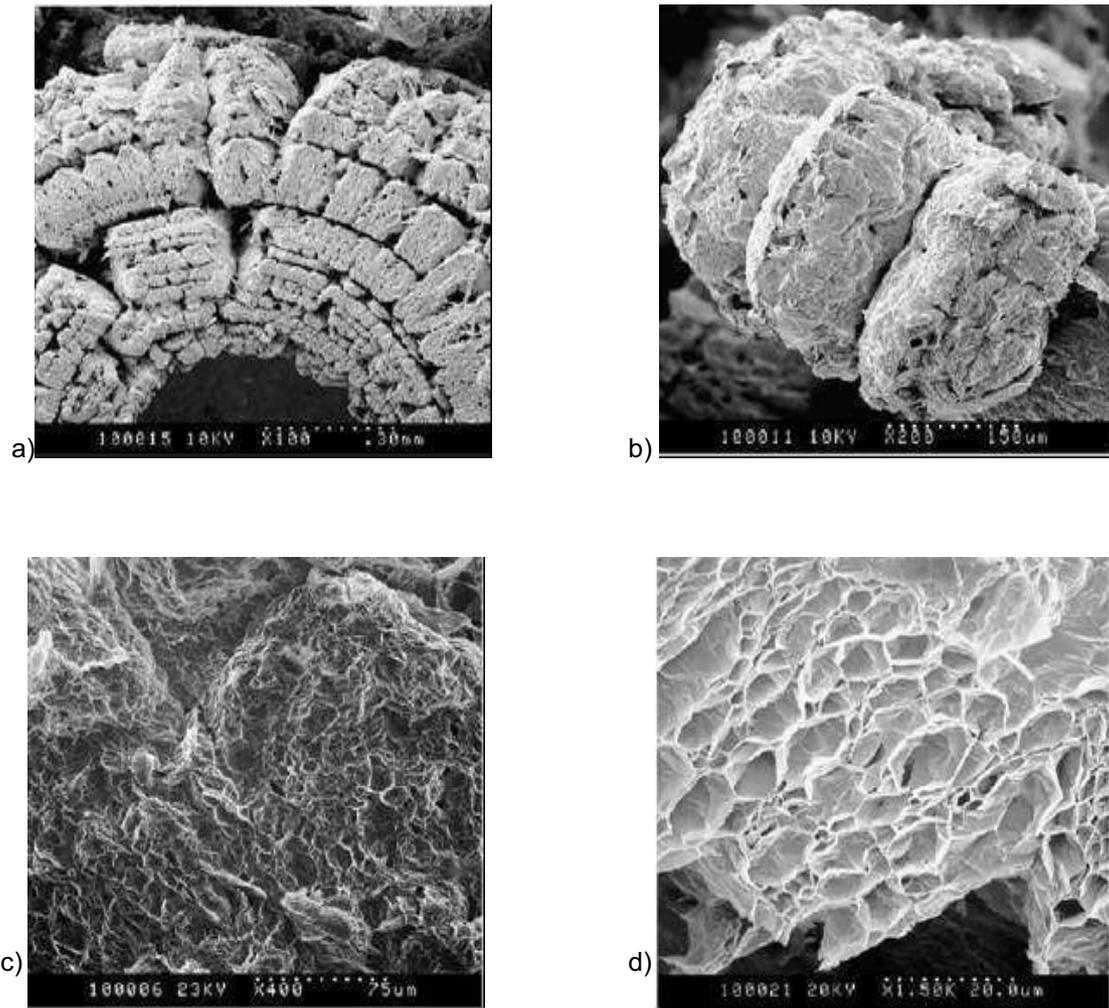


Figure 2.2 : Structure du GNE (Celzard et al. [30]) : a) Ballons (x100) ; b) Ballons (x200) ; c) Feuilles élémentaires (x400) ; d) Feuilles élémentaires (x1500).

Kang et al. [32] ont observé entre autres que le volume après exfoliation, la surface spécifique et le volume des pores du GNE dépendent fortement de la température d'exfoliation et ce, jusqu'à 800°C. Les auteurs ont également remarqué que la forme des pores des particules de GNE est ellipsoïdale et que la distance entre deux « ballons » vicinaux diminue lorsque la température et le volume d'exfoliation augmentent.

Une surface spécifique importante, un vaste espace poreux, une faible masse volumique, une bonne capacité de cohésion, une forte conductivité électrique, une perméabilité élevée ainsi que des propriétés thermiques intéressantes prédestinent le GNE à un large panel d'applications [29]. Par exemple, une des grandes applications du GNE est le papyex® [33]. Il se présente sous forme de feuilles formées par compression et laminage de particules de GNE. Ces feuilles sont surtout utilisées comme joint d'étanchéité.

Ces dernières années, l'utilisation du GNE comme adsorbant dans les pompes à chaleur (PAC) s'est très développée [34,21,35,36]. En effet, grâce à leur forte conductivité thermique et leur forte perméabilité les matrices de graphite poreuses peuvent nettement améliorer les propriétés des transferts de la chaleur échangée durant le processus d'adsorption/désorption tout en facilitant l'écoulement des fluides de travail.

### 2.1.2. Le Timrex<sup>®</sup> SFG

Le Timrex<sup>®</sup> SFG est un graphite synthétique élaboré et fourni par la société TIMCAL Graphite & CARBON. Ses domaines d'application sont nombreux et variés. Il s'agit d'un composé utilisé pour ses qualités conductrices dans le dopage de polymères, les piles à combustible ou même les batteries. Il est produit à une température supérieure à 2500°C via un procédé de graphitisation contrôlée.

Le Timrex<sup>®</sup> SFG se présente sous forme de lamelles micrométriques (fig.2.3a) ayant des propriétés structurales similaires à celles du graphite naturel.

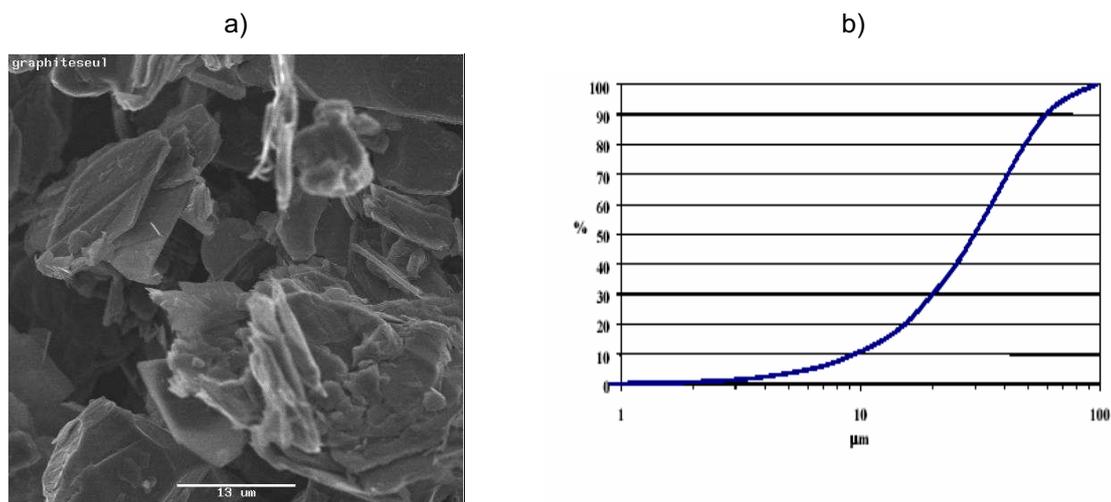


Figure 2.3 : a) Cliché MEB : Amas de particule de Timrex<sup>®</sup> SFG75 : b) Distribution de particule de Timrex<sup>®</sup> SFG 75 (données fournisseur).

Le fournisseur propose plusieurs tailles de particule pour la variété SFG (6, 15, 44, 75 et 150 μm). Nous verrons plus tard que la taille des particules peut avoir une certaine influence sur la conductivité thermique effective des composites.

### 2.1.3. L'eutectique Nitrate de Sodium/Nitrate de Potassium

Parmi les sels étudiés dans le projet HTP-STOCK (cf. [37]), nous avons sélectionné le mélange  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  en proportion eutectique (50%<sub>mol</sub>) pour analyser l'effet du graphite sur les propriétés thermiques. Le diagramme de phase de ce système binaire est présenté sur la figure 2.4a). La température de fusion du point eutectique est de 222 °C et la chaleur latente d'environ 105 J.g<sup>-1</sup> (cf. [37]). Il s'agit d'un sel bon marché, peu hygroscopique et peu corrosif.

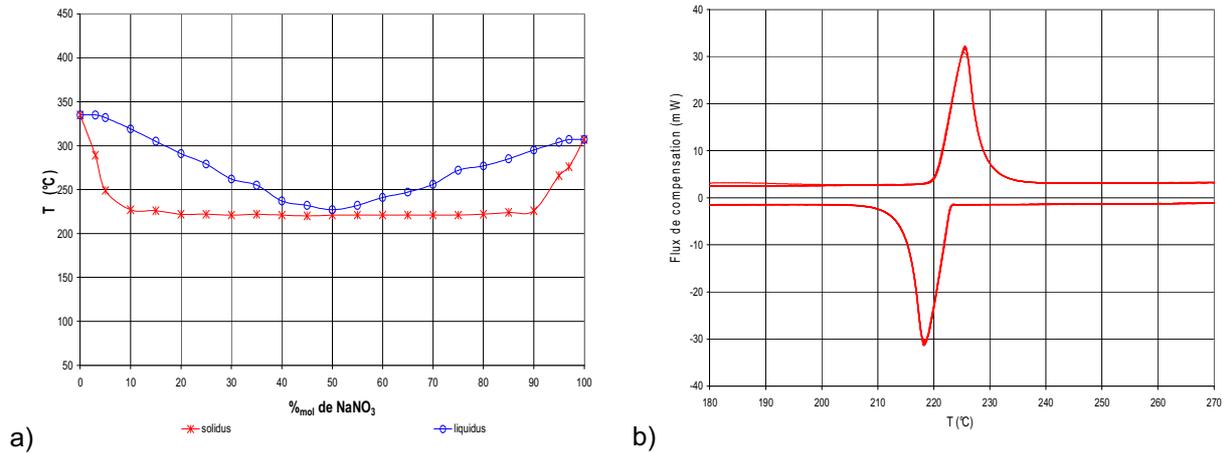


Figure 2.4 : a) Diagramme de phase du binaire  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  [38] ; b) Flux de compensation DSC en fonction de la température pour le binaire  $\text{KNO}_3/\text{NaNO}_3$  ayant subi 10 cycles de refroidissement et de réchauffement à 5%/min. (source : J. Lopez [37])

Les propriétés des nitrates et de leurs mélanges ont été largement étudiées [46,39]. Kramer et al. [39] ont montré, par exemple, que le mélange  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  présentait une température de décomposition, plus élevée que celle de  $\text{NaNO}_3$  et de  $\text{KNO}_3$  seuls. Dans la figure 2.4b) on apprécie la stabilité du mélange  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  (50% $_{\text{mol}}$ ) au cours de cycles successifs de fusion/cristallisation. D'après les travaux de J. Lopez [37] et de S. Pincemin [40], les propriétés thermodynamiques, ainsi que la stabilité de cet eutectique ne sont pas altérées par la présence du graphite et ce, quel qu'en soit le type ou la quantité de graphite utilisés. Ce mélange a été longtemps employé pour le transfert et le stockage de l'énergie thermique dans des centrales solaires [41].

## 2.2. Elaboration des composites par dispersion

Le procédé d'élaboration par dispersion consiste simplement à disperser une quantité connue de graphite Timrex<sup>®</sup> dans un mélange eutectique de sel fondu formé de  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  (sel par la suite). Cependant, deux protocoles distincts d'élaboration ont été mis au point.

### Protocole d'élaboration n°1

L'élaboration d'un échantillon de composite  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$ -Timrex<sup>®</sup> SFG avec x% de graphite en masse (x% $_{\text{m}}$ ) s'effectue comme suit :

- Dans un premier temps on pèse les masses de graphite et sels nécessaires pour produire la quantité de composite voulue en respectant le pourcentage x% $_{\text{m}}$  de SFG souhaité.
- Puis, on introduit la masse de sel dans un creuset en nickel que l'on place dans un four préalablement chauffé à 50°C au-delà de la température de fusion du sel.
- Une fois la fusion du sel obtenue, on disperse la quantité de Timrex<sup>®</sup> SFG75 tout en remuant afin d'obtenir un mélange liquide homogène.
- On finit par couler le contenu du creuset dans un moule creux reposant sur une plaque plate qu'on laisse refroidir à température ambiante.

La forme, la taille et l'état de surface des échantillons élaborés sont dictés par les exigences des moyens de caractérisation disponibles. La plupart des échantillons élaborés sont de forme parallélépipédique, avec des dimensions 25x25xe, 45x45xe ou 100x100xe mm, avec des épaisseurs e variables. Pour ce qui est de la planéité : celle de la face inférieure est donnée par la plaque plate sur laquelle repose le moule, tandis que celle de la face supérieure est obtenue soit par découpe guidée de l'échantillon à l'aide d'une scie circulaire, soit par polissage.

**Les problèmes majeurs rencontrés** lors de l'application du protocole n°1 sont :

- Une limite quant à la quantité maximale de SFG que l'on peut disperser dans le sel. Au-delà de 20%*m* de SFG, le mélange devient tellement visqueux que la coulée s'avère difficile. Le composite prend alors une forme granulaire (voir figure 2.5a).
- Une porosité significative répartie aléatoirement sur tout le volume de l'échantillon (voir figure 2.5b). A l'origine de cette porosité on trouve essentiellement : a) le brassage nécessaire à l'homogénéisation du mélange liquide obtenu après dispersion du graphite dans le sel fondu ; et b) la coulée du mélange.

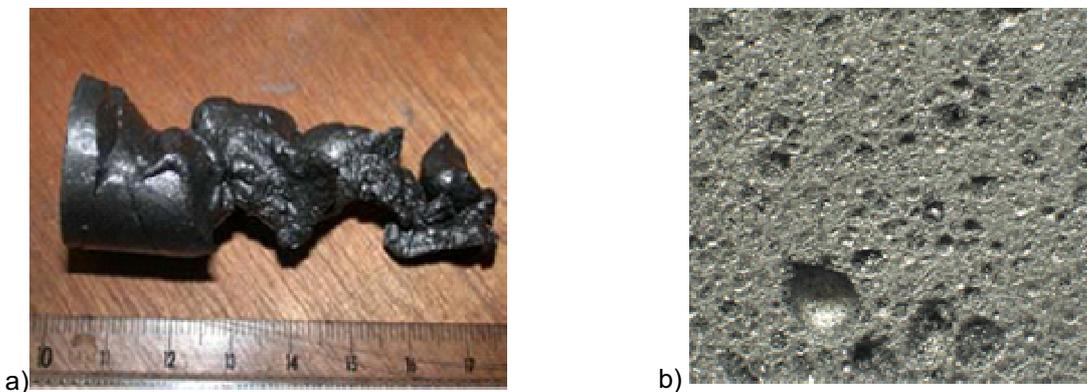


Figure 2.5 : a) Granulats de  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$ -Timrex SFG75 (20%*m*) [42] ; b) Illustration du problème de porosité, composite  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  - SFG 75 (15%*m*)

### **Protocole d'élaboration n°2**

Face aux problèmes rencontrés avec le protocole n°1, un deuxième protocole de mise en forme par dispersion a été imaginé. Il s'agit d'effectuer la dispersion du graphite dans le sel directement dans le moule où le mélange est ensuite refroidi et soumis à une légère pression uniaxiale, aidant à consolider et à dégazer. En s'affranchissant de la phase de coulée, on arrive à dépasser sans difficulté la limite du 20%*m* de SFG et à diminuer légèrement la porosité.

On verra par la suite (chapitre 3) que ce protocole ne conduit pas nécessairement à des composites possédant de meilleures propriétés thermiques, la réduction de la porosité étant insuffisante. En effet, il semblerait que le protocole n°2 ne fait que diminuer la taille des bulles d'air piégé.

Si l'on souhaite venir à bout de ce problème, on peut avoir recours à un agent d'affinage comme employé lors de l'élaboration des verres qui possèdent également une forte viscosité à l'état liquide. Cet agent d'affinage (le sulfate de sodium pour l'élaboration du verre) est ajouté au mélange visqueux pour faire grossir les bulles gazeuses. Elles peuvent alors remonter à la surface et disparaître. La question serait de trouver un agent d'affinage pour l'élaboration des matériaux graphite/sel.

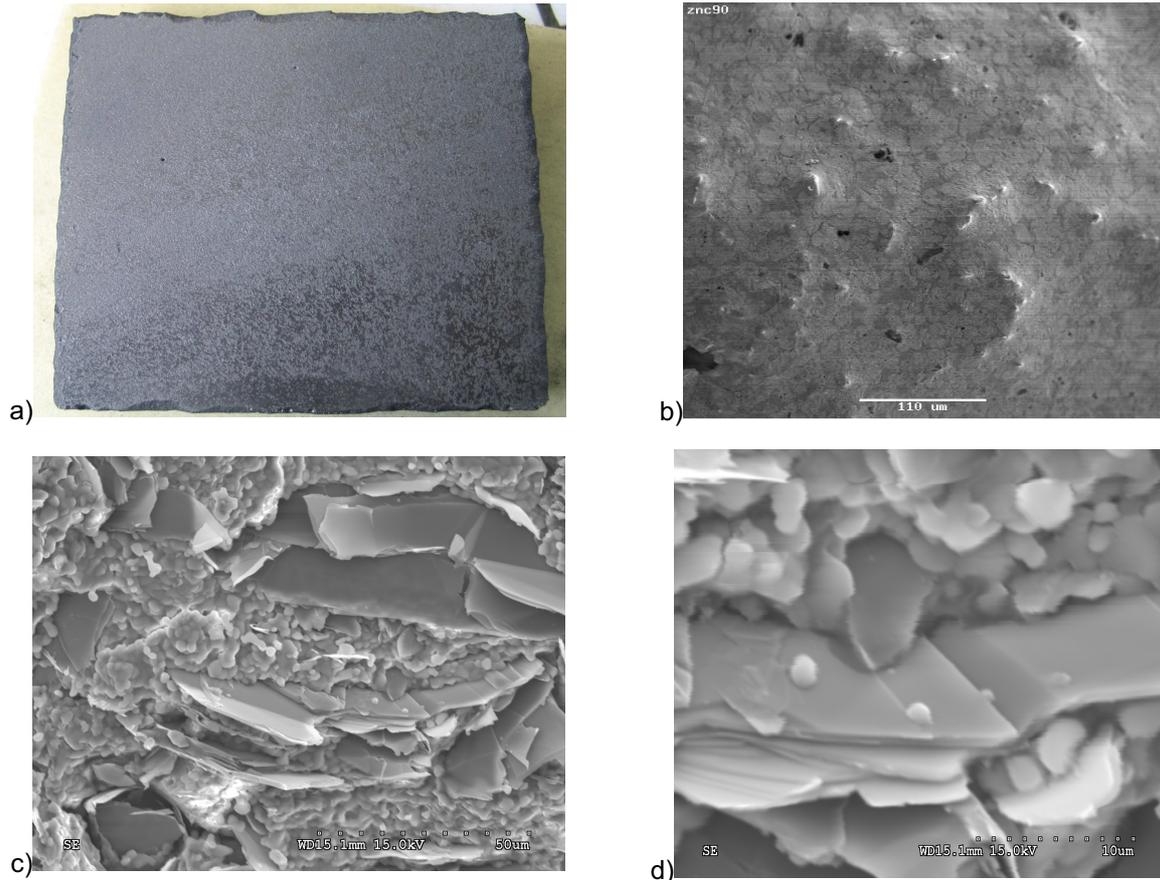


Figure 2.6 : a) Photo d'un échantillon  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$ -Timrex SFG75 (15% $_m$ ) de 100x100x20 mm; b) Image MEB d'un échantillon  $\text{ZnCl}_2$ -Timrex SFG44 (5% $_m$ ) ; c) et d) Images MEB d'un échantillon  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$ -Timrex SFG75 (15% $_m$ ) à deux résolutions différentes.

### Microstructure des composites

A l'échelle macroscopique (figure 2.6a), les composites obtenus par dispersion offrent l'apparence d'un milieu homogène et isotrope. Leur isotropie macroscopique a été vérifiée à travers la mesure des propriétés physiques telles que la diffusivité et la conductivité thermiques au chapitre 2. Il faut descendre à l'échelle millimétrique pour constater la nature hétérogène du milieu (voir figure 2.6b). A cette échelle, les composites ressemblent à une dispersion aléatoire de particules ellipsoïdales et plates (graphite) dans une phase continue (sel). Une morphologie encore plus complexe est dévoilée par des images à l'échelle micrométrique (figures 2.6c et 2.6d). On découvre une phase cristalline discontinue, faite de petits cristaux regroupés dans le désordre entre les particules de graphite. Les contacts entre le sel et le graphite s'avèrent être imparfaits. Par ailleurs, l'existence d'une microporosité significative s'impose à la vue.

## 2.3. Elaboration par compression uniaxiale

Le procédé d'élaboration par compression uniaxiale consiste à compresser à froid un mélange de particules de GNE et de sel en poudre. Nous commençons cette section en rappelant brièvement l'état actuel des connaissances concernant les matrices de GNE, qui constituent un repère pour nos développements. On présente ensuite le protocole de compression des mélanges GNE/sel que nous avons adopté et nous décrivons qualitativement la structure des composites obtenus. A la fin de la section, nous recensons l'ensemble de problèmes rencontrés lors de cette mise en forme.

Pour un échantillon de volume  $V$  élaboré par compression, nous allons noter respectivement  $m_g$  et  $m_s$  les masses de GNE et de sel contenues dans l'échantillon et  $V_g$  et  $V_s$  leurs volumes respectifs. On définit les densités apparentes de graphite ( $\rho_{ag}$ ) et de sel ( $\rho_{as}$ ) par :

$$\rho_{ag} = m_g / V \quad \rho_{as} = m_s / V$$

Leurs fractions volumiques respectives sont :

$$\phi \equiv V_g / V = \rho_{ag} / \rho_g \quad \phi_s \equiv V_s / V = \rho_{as} / \rho_s$$

où  $\rho_g$  et  $\rho_s$  représentent les masses volumiques du graphite et du sel. Il est aisé de montrer que la porosité totale de l'échantillon ( $\varepsilon$ ) est telle que :

$$1 = \phi + \phi_s + \varepsilon$$

### Les matrices de GNE

Les matrices de graphite sont obtenues en compressant uniaxialement des vermicules de GNE : une masse connue de GNE est introduite dans un tube long, puis pressée à l'aide d'un piston jusqu'à ce que l'échantillon atteigne le volume souhaité. Au cours de la compression, les vermicules s'aplatissent et se froissent, ce qui favorise leurs entrelacements ainsi que leurs cohésions [48]. Le résultat est une matrice poreuse dont la structure peut se décrire à deux échelles différentes : celle de la porosité entre les vermicules aplaties de GNE (macroporosité, fig. 2.7 à gauche) et celle de la porosité à l'intérieur des particules de GNE (microporosité, fig. 2.7 à droite).

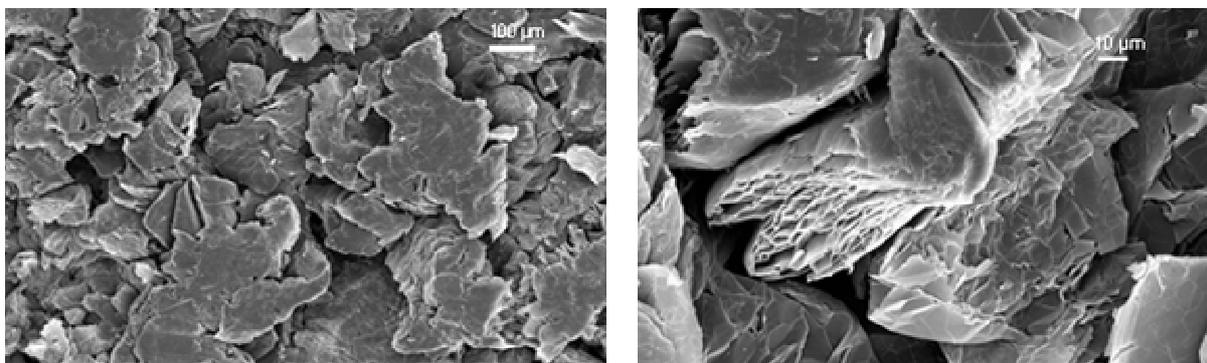


Figure 2.7 : Images MEB d'une matrice de GNE à deux échelles permettant d'apprécier la double porosité de la structure. A gauche la macroporosité (espace entre vermicules), à droite la microporosité (alvéoles à l'intérieur des vermicules)

De plus, lors de la compression, les feuilles de graphite tendent à se placer dans des plans perpendiculaires à l'axe de compression. A l'échelle macroscopique, apparaît alors une alternance de couches parallèles à « forte » et « faible » densité de graphite (voir figures 2.8 et 2.9). Tout ceci confère à la matrice de GNE des propriétés macroscopiques orthotropes. Dans ce document, on parlera souvent de conductivités thermiques (voire effusivités) axiale (dans le sens de la compression) et radiale (dans le sens transverse à la compression).

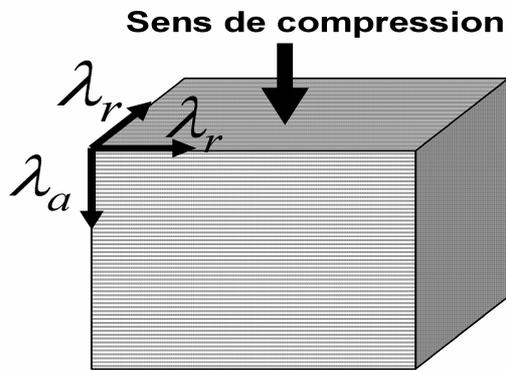


Figure 2.8 : Schéma de compression et de la structure en couches parallèles qui résulte.

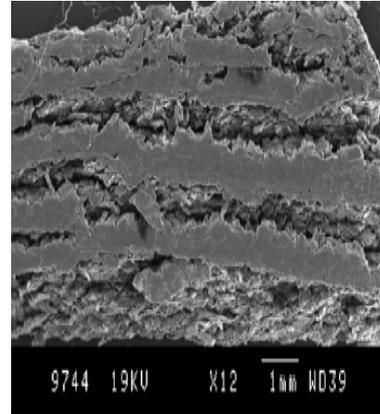


Figure 2.9 : Photo MEB montrant l'alternance de couches à « forte » et « faible » densité de GNE.

Les expériences visuelles effectuées par Celzard et al. [43] ont permis de retracer un processus de consolidation des vermicules de GNE. Deux phases majeures peuvent être distinguées :

- La phase d'empilement où les vermicules de GNE se réorientent et se rapprochent les uns des autres. Une certaine diminution de la macroporosité est observée sans qu'il y ait encore déformation des particules de GNE (leur densité ne change pas).
- La phase de déformation, dont le début est défini par le seuil de rigidité (seuil à partir duquel le module d'Young de la matrice devient non nul). Quand cette limite est atteinte ( $\sim 3-10$  Kg de GNE par  $m^3$ ), le mouvement relatif des vermicules cesse et leur déformation commence. De façon progressive et homothétique, les vermicules de GNE deviennent plus petits et se rapprochent. Le rapport  $\xi = \text{macroporosité} / \text{porosité totale}$  devient donc constant.

Dans le même article, on trouvera une étude exhaustive et approfondie des propriétés physiques de l'espace et de la phase solide des matrices de GNE. Les propriétés thermiques de ces matrices ont été étudiées par Bonnisel [44], Olives [35] et Py [17]. Outre la mise en évidence du caractère orthotrope des transferts, ces auteurs montrent que les propriétés thermiques effectives (ex. : conductivités axiale et radiale) des matrices de GNE peuvent s'expliquer à l'aide d'un seul paramètre structurel : la densité apparente de la matrice ( $\rho_{ag}$ ), définie comme étant le rapport entre la masse de GNE ( $m_g$ ) et le volume de l'échantillon ( $V$ ). Ainsi, fixer les propriétés thermiques d'une matrice de GNE revient à fixer sa densité apparente et donc à déterminer, lors de l'élaboration, la masse de graphite nécessaire à l'obtention d'un échantillon de volume  $V$  avec la valeur de densité apparente  $\rho_{ag}$  souhaitée :  $m_g = \rho_{ag} V$ .

### Compression du mélange GNE/sel

Concernant l'étude de la compression d'un mélange de vermicules de GNE et de poudre de sels, la littérature est malheureusement peu abondante. Mauran et al [45] établissent une loi comportementale liant contrainte et déformation au cours de la compression d'un mélange de GNE et de  $MnCl_2$ . Les auteurs montrent qu'à contrainte axiale fixée, l'inverse de la densité apparente du mélange est liée à la teneur en masse de GNE par une relation polynomiale d'ordre 2. Plus proche de nos objectifs, le travail de Olives et al. [35] traite des propriétés thermiques de matrices de GNE imprégnées de sel. Ils montrent que les conductivités thermiques (axiale et radiale) dépendent à la fois de la densité apparente de la matrice et de la fraction volumique (voire massique) du sel.

Ce résultat reflète les modifications structurales induites par la présence du sel dans la matrice de GNE. Après une phase d'empilement, on peut s'attendre à ce que les particules du sel (solide « indéformable ») conditionnent la déformation et la densification (donc la tortuosité) du GNE. Dans la figure 2.10, nous avons représenté les courbes déformation - contrainte correspondant à la compression du GNE seul et à la compression de deux mélanges GNE/sel. On observe que la présence du sel entraîne un raccourcissement de la phase d'empilement et limite la déformation du mélange. De plus, on distingue trois phases (au lieu de deux) distinctes de densification dont le début est signalé par un changement significatif de la dérivée de la déformation par rapport à la contrainte.

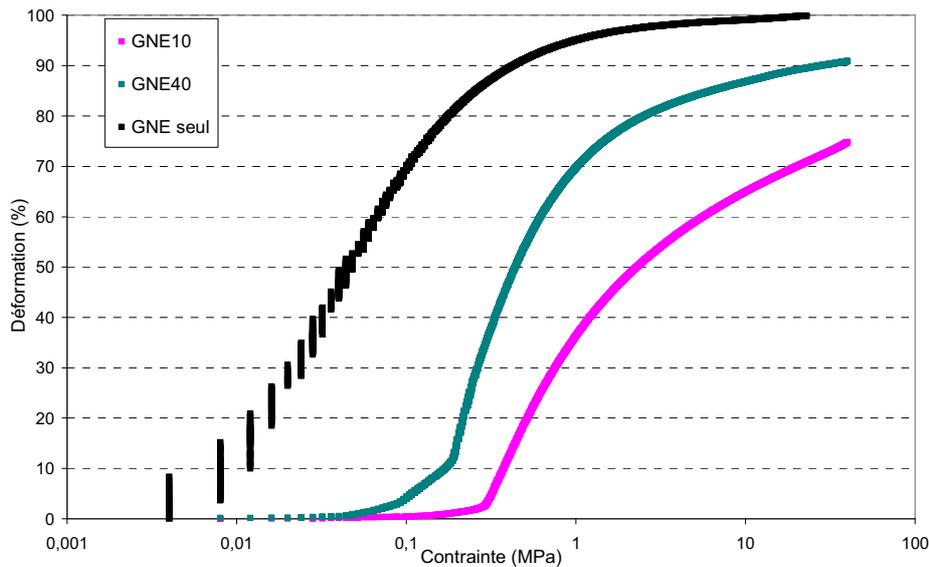


Figure 2.10 : Courbes de déformation – contrainte lors de la compression du GNE seul (en noir) et de la compression de deux mélanges GNE/sel (GNE10 : 10%*m* de GNE ; GNE40 : 40%*m* de GNE).

Ainsi  $\rho_{ag}$  (voire  $\phi$ ) n'est plus le seul paramètre influant sur les propriétés thermiques des matrices GNE/sels, et l'on doit alors tenir compte de la fraction volumique de sel ( $\phi_s$ ). Les composites GNE/sels peuvent alors être élaborés de différentes façons. En effet, pour une fraction volumique de sel ( $\phi_s$ ) donnée, on peut obtenir différentes densités apparentes de la matrice en faisant varier  $\phi$  dans l'intervalle  $[0, 1-\phi_s]$ . De même il est possible de fixer  $\phi$  et de faire varier  $\phi_s$  dans  $[0, 1-\phi]$ . Une étude exhaustive des matériaux GNE/sel aurait exigé de suivre les deux voies. Nous avons adopté

une démarche intermédiaire, certes critiquable, mais qui permet un premier balayage du domaine de variation de ces deux grandeurs.

### **Protocole d'élaboration des composites GNE/sel**

Sachant que les sels subissent une expansion volumique lors de la fusion, il est judicieux de concevoir les composites GNE/sel pour laisser au sel l'espace nécessaire à sa transformation. Autrement, on risque de dégrader la matrice et/ou de provoquer des fuites de sel. Aussi, la transformation de phase du sel sous contrainte induit des comportements thermodynamiques non souhaités (cf. [37]). Arbitrairement, nous avons décidé d'une porosité totale de 20-25% environ pour tout échantillon ( $\varepsilon = 0.2 - 0.25$ ), sachant qu'une partie de la porosité de la matrice ne sera pas accessible au sel. On notera que fixer la valeur de  $\varepsilon$  revient à établir un rapport de linéarité entre  $\phi_s$  et  $\phi$  pour l'ensemble des échantillons étudiés. Nous explorons donc le sous domaine :

$$\phi_s = (1 - \varepsilon)_{\text{fixé}} - \phi$$

des combinaisons possibles de  $\phi_s$  et  $\phi$ .

Les étapes du protocole d'élaboration d'un composite de volume  $V$  et fraction volumique de GNE  $\phi$  (ou à masse volumique apparente  $\rho_{ag}$ ) sont alors les suivantes :

- Tout d'abord, on calcule les masses de GNE et de sel nécessaires

$$\rho_{ag} \Rightarrow m_g = \rho_{ag} V$$

$$\rho_{ag} \Rightarrow \phi = \rho_{ag} / \rho_g$$

$$\phi \Rightarrow \phi_s = 1 - \varepsilon - \phi$$

$$\phi_s \Rightarrow \rho_{as} = \phi_s \rho_s$$

$$\rho_{as} \Rightarrow m_s = \rho_{as} V$$

et on les obtient par pesé.

- Puis, ces masses sont introduites dans un conteneur pour y être manuellement mélangés. Il s'agit d'une étape délicate car les densités volumiques du GNE et du sel sont très différentes.
- Ce mélange est introduit dans un moule conçu spécialement pour l'élaboration de composite GNE/sel (voir figure 2.11, à gauche) et finalement compressé. On utilise pour ce faire une machine de traction - compression disponible à l'ENSAM (voir figure 2.11, à droite). La compression se fait à vitesse constante (20mm/min) jusqu'à atteindre le volume d'échantillon souhaité. La contrainte en fin d'expérience est de 40 MPa.



Figure 2.11 : Gauche : Moule creux et piston en aluminium (coté intérieur 50 mm, hauteur 350 mm) ; Droite : Machine de traction - compression.

La figure 2.12 montre l'évolution de  $\phi_s$  en fonction de  $\phi$  pour une série d'échantillons élaborés (points en bleu). On constate bien l'alignement des points selon une droite :  $\phi_s = (1 - \varepsilon)_{\text{fixé}} - \phi$ . La porosité des échantillons est donnée par différence entre la ligne noire en haut ( $\phi'_s = 1 - \phi$  ;  $\varepsilon = 0$ ) et les points correspondant aux échantillons élaborés.

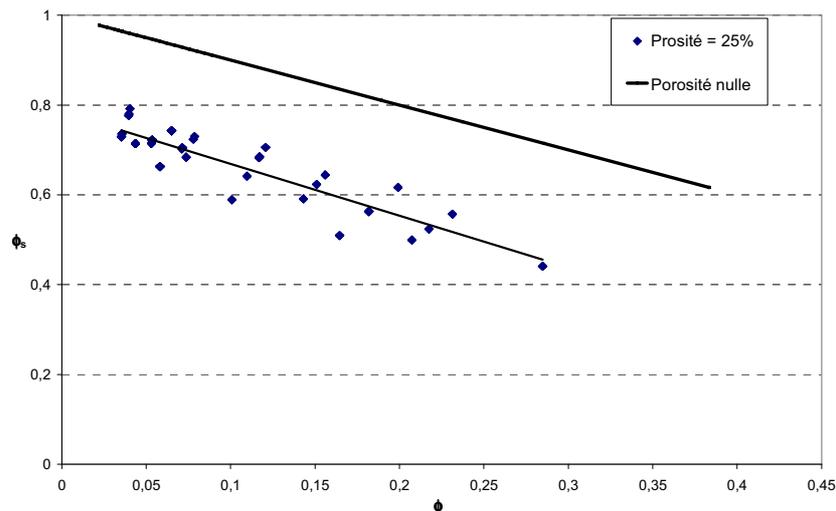


Figure 2.12 : Fraction volumique de  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  en fonction de la fraction volumique de GNE des composites élaborés.

### Structure des composites élaborés par compression

Cette méthode aboutit à une matrice consolidée de graphite dont la porosité est partiellement occupée par les grains de sel. A l'échelle de l'échantillon, on observe une matrice caractérisée par une alternance de couches avec des « faibles » et « forts » contenus en sel (figure 2.13a). Pour abrégier, nous parlerons de couches de graphite et de couches de sel. A l'échelle microscopique, l'image 2.13b permet de constater que les couches de graphite présentent une structure similaire à celle des matrices de GNE. Lors de la compression du mélange GNE/sel, les vermicules de GNE arrivent toujours à se réarranger et s'orienter perpendiculairement à l'axe de compression. L'image MEB dans la figure 2.13c montre la complexité et l'irrégularité des interfaces entre couches de

graphite et couches de sel. Aussi, la figure 2.13d permet d'apprécier un mélange assez désordonné de sel et de GNE dans les couches dites de sel. On observe également comment les particules de sel sont enveloppées dans le GNE.

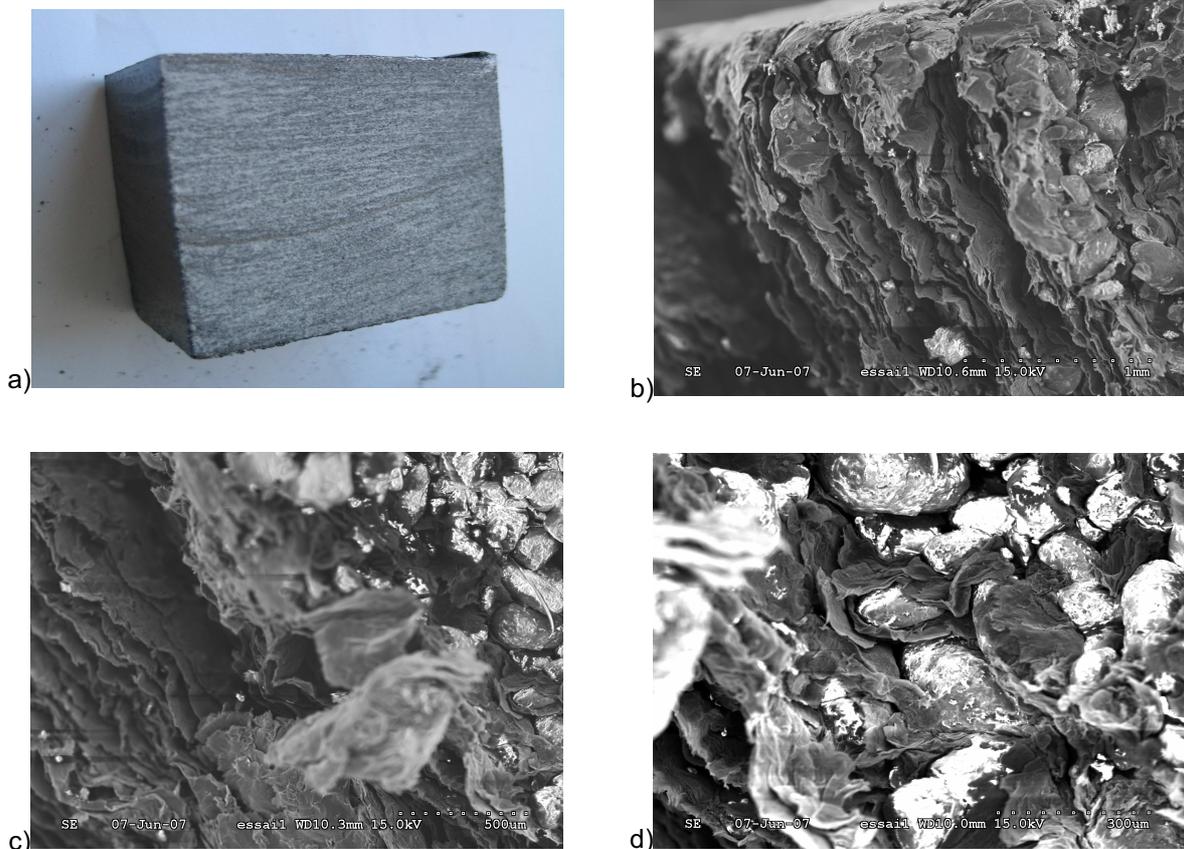


Figure 2.13 : a) Composite  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$ -GNE (10%) élaboré par compression ; b) Image MEB montrant la structure des couches de graphite ; c) Photo MEB d'une interface entre couche de graphite et couche de sel ; d) Image MEB montrant la structure d'un couche de sel.

### Problèmes rencontrés

Les problèmes majeurs rencontrés lors de l'élaboration des composites GNE/sel sont décrits ci-dessous. Ils concernent la difficulté du mélange des composants avant compression et les effets que nous appellerons de peau et de bord.

Etant donné la différence considérable de masse volumique existante entre le GNE ( $3 \text{ kg.m}^{-3}$ ) et le  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  ( $2140 \text{ kg.m}^{-3}$ ), il est très difficile d'obtenir un mélange de départ homogène et encore plus d'obtenir deux fois de suite ce même mélange. Par ailleurs, en versant le mélange dans le moule, des problèmes de séparation des phases peuvent survenir.

Lors de la compression, le seul souffle créé entre le piston et le mélange des poudres suffit à pousser une quantité de GNE sur les parois du moule. Ce phénomène s'explique du fait de la très faible masse volumique des vermicules de GNE ( $\sim 3 \text{ Kg.m}^{-3}$ ). Ceci produit une couche mince plus dense en GNE à la surface du composite qui engendre un « Effet de Peau » (figure 2.14a). Cette couche est plus importante sur les faces de l'échantillon perpendiculaires à l'axe de compression que sur les faces latérales. Il s'agit d'une couche limite plus conductrice qui pourrait biaiser les mesures de

conductivité thermique. C'est pourquoi il est nécessaire de s'en affranchir soit par polissage, soit par échantillonnage au centre du composite.

Un effet de bord peut également apparaître. Il se traduit par une distorsion près du bord des échantillons de la structure en couches parallèles de la matrice graphite/sel. On remarque nettement ce phénomène dans la figure 2.14b, la succession de couches graphite/sel s'incurvant à proximité des bords de l'échantillon. Il convient alors d'échantillonner au cœur de la matrice pour éviter des possibles biais dans les mesures de conductivité thermique et le cas échéant d'éliminer des échantillons. Toutefois, on constatera plus tard (Chapitre 4) une légère dégradation du caractère orthotrope des matrices GNE/sel qui est en rapport avec cet effet de bord. Nous rappelons que ces effets sont d'autant plus importants que la taille des échantillons est petite et qu'il conviendra donc de penser à l'élaboration d'échantillons plus gros.

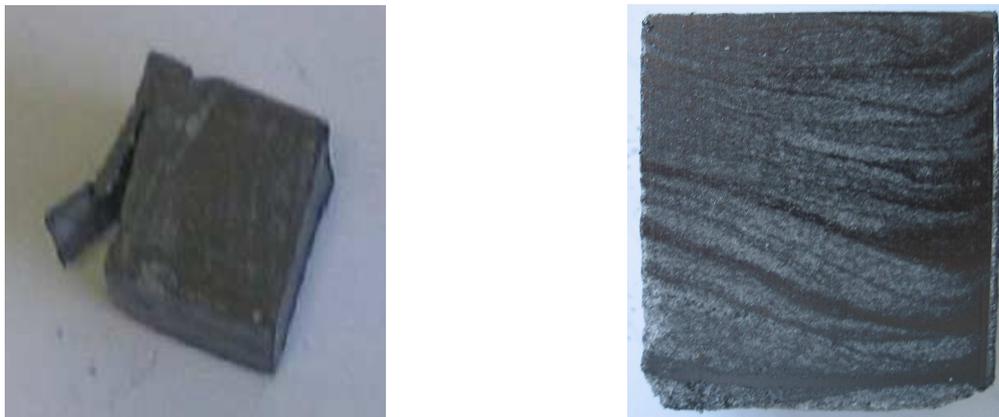


Figure 2.14 : A gauche : Illustration de l'effet de peau ; A droite : Photo d'une coupe radiale d'un composite  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$ -GNE (10% m).

## 2.4. Autres moyens d'élaboration

Nous décrivons ici brièvement d'autres voies d'élaboration qui ont été étudiées dans le cadre des projets HTP-STOCK et DISTOR.

A l'instar des résultats obtenus avec la paraffine [17], l'infiltration avec du sel fondu d'une matrice de GNE pré - consolidée a été étudiée par le laboratoire PROMES. Malheureusement, cette voie d'élaboration s'est avérée inefficace en raison de la viscosité élevée des sels et de la microstructure particulière des matrices de GNE. Même en infiltration sous vide, le taux de remplissage de la matrice reste insuffisant et la répartition du MCP extrêmement hétérogène (Figure 2.15a).



Figure 2.15 : A gauche : Vue d'un échantillon obtenu par infiltration [42] ; Centre : Echantillon élaboré par compression isostatique ; A droite : Granulés élaborés par fusion d'un mélange de graphite (GFG ou GN) et de sel en poudre.

Parallèlement, la société suisse/allemande SGL Carbon Group a mis au point deux autres voies d'élaboration dans le cadre du projet DISTOR. Il s'agit tout d'abord de l'élaboration par compression isostatique dans un bain d'huile d'un mélange à froid de graphite GFG (GNE broyé) et de billes de sel (amas de cristaux). Les pressions appliquées sont considérables et avoisinent les 2000 bar. Les composites obtenus sont constitués d'une phase isotrope, continue et dense en graphite où viennent s'incruster les particules millimétriques du sel (figure 2.15b). Des échantillons issus de cette méthode ont été partiellement testés dans le cadre de la collaboration établie entre les projets HTP-STOCK et DISTOR. La deuxième voie développée est l'élaboration par fusion d'un mélange à froid de graphite naturel (GN) ou de GFG et de sel en poudre. Les composites obtenus se présentent sous forme granulaire (figure 2.15c).

## 2.5. Conclusion

Dans ce premier chapitre, les matériaux sources pour l'élaboration de composites destinés au stockage d'énergie à haute température (SEHT) ont été présentés. Il s'agit :

- des vermicules de GNE possédant une très faible masse volumique, une porosité élevée et une grande capacité de consolidation.
- des particules de graphite synthétique Timrex<sup>®</sup> SFG qui s'apparentent aux particules de graphite naturel.
- du mélange en proportion eutectique (50%<sub>mol</sub>) de NaNO<sub>3</sub>/KNO<sub>3</sub>. Ce mélange possède tous les atouts nécessaires pour être utilisé comme MCP (chaleur latente élevée, non hygroscopique, peu corrosif, stable, ...).

Par ailleurs, les méthodes d'élaboration de composites associées à chaque type de graphite ont également été décrites. Il s'agit de la compression uniaxiale d'un mélange de vermicules de GNE et de sel en poudre et la dispersion de particules de Timrex<sup>®</sup> SFG dans un bain de sels fondus. La première conduit à l'obtention de composite aux propriétés anisotropes. Elle souffre malheureusement de problèmes de reproductibilité dus à la grande différence de masse volumique entre le GNE et le sel, rendant difficile l'obtention d'un mélange homogène avant compression. L'élaboration par dispersion fournit des matériaux aux propriétés plus homogènes. Des risques de ségrégation sel/graphite sont néanmoins possibles, ce qui pourrait affecter la stabilité de ces composites.

## Chapitre 2 : Présentation des matières premières et des composites

Les autres moyens de mise en forme détaillés dans ce chapitre n'ont pas survécu aux premiers tests, si ce n'est l'élaboration par compression isostatique. Cette méthode développée dans le cadre du programme européen DISTOR à l'avantage de fournir des composites beaucoup plus denses et présentant des propriétés isotropes.

Finalement, les deux méthodes d'élaboration employées possèdent à la fois des avantages et des inconvénients pour être transférés à l'échelle industrielle. L'élaboration par compression a l'avantage d'une manipulation des produits à froid, mais peut exiger des moyens de compression onéreux à grande échelle. De plus, telle que pratiquée aujourd'hui la méthode ne possède pas le niveau de reproductibilité requis à l'échelle industrielle. L'élaboration par dispersion nécessite une manipulation des produits à chaud, ce qui augmente considérablement le prix de revient du matériau à grande échelle. Il faut rappeler que les composites ont surtout été élaborés en vue d'être caractérisés avec les moyens disponibles au laboratoire. Ainsi la forme, l'état de surface et l'hygroscopicité des composites ne poseront pas forcément de complications au moment de leur utilisation. Par contre les problèmes liés à la reproductibilité de la mise en forme ou à la stabilité du matériau s'avèrent être plus embêtants aussi bien à l'échelle du laboratoire que celle de l'industrie. Nous verrons également plus tard les différences existantes entre les propriétés de transferts thermiques des matériaux issus de ces deux techniques d'élaboration.

## **Chapitre 3: Propriétés thermiques des composites élaborés par dispersion**

*Ce chapitre est dédié à l'étude des propriétés thermiques des matériaux SFG/Sel. Nous présentons dans la première section l'ensemble des matériaux/échantillons qui ont fait l'objet de cette étude, en les décrivant à travers quelques propriétés texturales d'intérêt pratique (fractions volumiques des phases, densités apparentes...). La deuxième section rappelle le principe de la méthode utilisée pour déterminer les propriétés thermiques des échantillons et analyse la qualité des résultats de ces mesures en termes de fiabilité et de justesse. Elle contient également une analyse concernant l'homogénéité des mélanges SFG/Sel et la porosité des échantillons élaborés.*

*C'est dans la troisième section que nous présentons l'ensemble des résultats de mesure : conductivités thermiques, effusivités thermiques, capacités thermiques et chaleurs massiques des échantillons. Une première analyse de ces résultats permet d'évaluer l'effet de la quantité de graphite dispersé dans le sel, ainsi que celui de la taille des particules de SFG, sur les propriétés thermiques effectives des matériaux graphite/sel et d'identifier des tendances d'évolution de celles-ci en fonction de la fraction volumique de SFG.*

*Enfin, une étude de modélisation de la conductivité thermique des composites élaborés par dispersion est proposée. Cette modélisation s'appuie sur la Théorie du Milieu Effectif Généralisé (TMEG) et permet d'approfondir sur la compréhension de l'effet du SFG (quantité et taille des particules) sur les propriétés effectives de transferts des matériaux étudiés.*

### 3.1. Les matériaux étudiés et leur caractérisation texturale

Le tableau 3.1 recense l'ensemble des matériaux SFG/Sel qui ont fait l'objet de cette étude. On les désigne :

$$\text{SFGxxx} / \text{yy}\% / \#n$$

où xxx représente la taille moyenne ( $\mu\text{m}$ ) des particules de SFG utilisées, yy% donne le pourcentage en masse de graphite ajouté au sel et #n (n=1,2) fait référence au protocole d'élaboration employé. Il s'agit des trois éléments qui différencient les matériaux testés.

Matériau	Densité apparente de l'échantillon	Densité apparente du SFG dans l'échantillon	Fraction volumique de SFG	Porosité de l'échantillon	
SFG75 / 0% /#1	2137,9	0	0	0,0237	Protocole #1 Effet de la quantité de SFG ajouté
SFG75 / 5% /#1	1932 *	96,5	0,0427	0,1191	
SFG75 / 10% /#1	1870 *	187,0	0,0827	0,1487	
SFG75 / 15% /#1	1495 *	224,2	0,0992	0,3205	
SFG75 / 0% /#2	2100 *	0	0	0,0410	Protocole #2 Effet de la quantité de SFG ajouté
SFG75 / 5% /#2	2104,1	105,2	0,0465	0,0406	
SFG75 / 10% /#2	1683,4	168,3	0,0744	0,2337	
SFG75 / 15% /#2	1842,7	276,4	0,1223	0,1624	
SFG75 / 20% /#2	1604,7	320,9	0,1420	0,2717	
SFG75 / 25% /#2	1646,1	329,2	0,1456	0,2529	
SFG150 / 10% /#2	1870,1	187,0	0,0827	0,1487	Protocole #2 Effet de la quantité de SFG ajouté
SFG150 / 15% /#2	1804,4	270,6	0,1197	0,1799	
SFG150 / 20% /#2	1875,2	374,8	0,1659	0,1490	
SFG150 / 20% /#2	1909,8	381,8	0,1690	0,1333	
SFG150 / 25% /#2	1813,7	381,8	0,2006	0,1782	
SFG15 / 10% /#2	1684 *	252,6	0,1117	0,2346	Protocole #1 Effet de la taille des particules de SFG
SFG44 / 10% /#2	1619 *	243,0	0,1074	0,2641	
SFG75 / 10% /#2	1794 *	269,1	0,1190	0,1846	
SFG150 / 10% /#2	1781 *	267,3	0,1182	0,1905	
SFG15 / 15% /#1	1308 *	130,8	0,0578	0,4045	Protocole #2 Effet de la taille des particules de SFG
SFG44 / 15% /#1	1466 *	146,6	0,0648	0,3326	
SFG75 / 15% /#1	1870 *	187,0	0,0827	0,1487	
SFG150 / 15% /#1	-	-	-	-	

Tableau 3.1 Matériaux SFG/Sel étudiés

Les colonnes 2 à 5 du tableau 3.1 apportent une description micro structurale des matériaux à travers quelques paramètres d'intérêt pour l'interprétation ultérieure des mesures. On considère un échantillon de volume  $V$  et de masse  $m$ , comportant trois phases distinctes distribuées aléatoirement : le sel (s), le graphite (g) et l'air (a). On note  $V_x$  et  $m_x$  (avec  $x = s, g, a$ ), respectivement, le volume occupé par chacune des phases et leurs masses respectives :

$$V = V_s + V_g + V_a \quad m = m_s + m_g + m_a$$

Le contenu de graphite dans l'échantillon est caractérisé, soit par sa fraction massique  $\omega = m_g / m$ , soit par sa fraction volumique  $\phi = V_g / V$ . La porosité de l'échantillon est :  $\varepsilon = V_a / V$ .

En notant  $\rho_x$  ( $x = s, g, a$ ) la masse volumique réelle des phases, il est aisé de montrer que la masse volumique apparente de l'échantillon est donnée par :

$$\rho \equiv \frac{m}{V} = (1 - \phi - \varepsilon)\rho_s + \phi\rho_g + \varepsilon\rho_a \approx (1 - \phi - \varepsilon)\rho_s + \phi\rho_g \quad (3.1)$$

On peut également définir une masse volumique apparente du SFG dans l'échantillon :

$$\rho_{ag} \equiv \frac{m_g}{V} = \phi\rho_g \quad (3.2)$$

On note enfin que :

$$\phi \equiv V_g / V = \omega \frac{\rho}{\rho_g} \quad (3.3)$$

et (voir équation (3.1)) :

$$\varepsilon \equiv V_a / V = \left(1 - \frac{\rho}{\rho_s}\right) - \phi \left(1 - \frac{\rho_g}{\rho_s}\right) \quad (3.4)$$

La masse volumique apparente des échantillons  $\rho$  (colonne 2) a été déterminée par mesure de la masse  $m$  et du volume  $V$  de l'échantillon à l'aide d'une balance de précision et d'un pycnomètre à mercure (ou d'un pied à coulisse, valeur marquée d'un (\*) dans le tableau 3.1) respectivement. De même, la mesure de  $m_g$  et  $V$  permet l'estimation de  $\rho_{ag}$  (colonne 3). Connaissant  $\rho$ ,  $\rho_s = 2190 \text{ kg.m}^{-3}$  [46] et  $\rho_g = 2260 \text{ kg.m}^{-3}$  [47], on détermine enfin la fraction volumique  $\phi$  de graphite (colonne 4) et la porosité  $\varepsilon$  de l'échantillon (colonne 5).

## 3.2. Qualité des échantillons et des mesures effectuées

Nous examinons ici la qualité des échantillons élaborés (homogénéité du mélange SFG/sel et porosité), ainsi que celle des mesures de conductivité et d'effusivité thermique effectuées. Nous rappelons tout d'abord (section 2.2.1) le principe de la méthode de mesure utilisée pour déterminer les propriétés thermiques des échantillons, en faisant ressortir des indicateurs concernant la qualité et la précision des estimations. L'analyse concernant l'homogénéité des mélanges SFG/sel est présentée dans la section 2.2.2 ; elle contient également l'analyse des échantillons en termes de porosité. La dernière partie (section 2.2.3) est consacrée à l'étude de la fiabilité des mesures de conductivité et d'effusivité thermiques réalisées sur l'ensemble des échantillons décrits dans le tableau 3.1.

### 3.2.1. Rappel de la méthode de mesure/estimation des propriétés thermiques des échantillons

La méthode utilisée pour la mesure des conductivités et des effusivités thermiques est décrite en détail dans l'annexe B de ce document. Il s'agit de la méthode du plan chaud avec suivi de l'évolution thermique en face avant et face arrière de l'échantillon. Le dispositif expérimental associé à la méthode est représenté schématiquement sur la figure 3.1 : l'échantillon à caractériser (parallélépipède de dimensions  $L \times L \times e$ ) est mis en contact avec un élément chauffant plan (sonde électrique de dimensions  $L \times L$ ) et inséré entre deux couches d'un matériau isolant dont l'effusivité thermique est connue. Un premier thermocouple est placé à l'interface entre l'élément chauffant et l'isolant thermique en contact avec celui-ci (thermocouple face avant), le second se situant à l'interface entre l'échantillon et le deuxième isolant (thermocouple en face arrière).

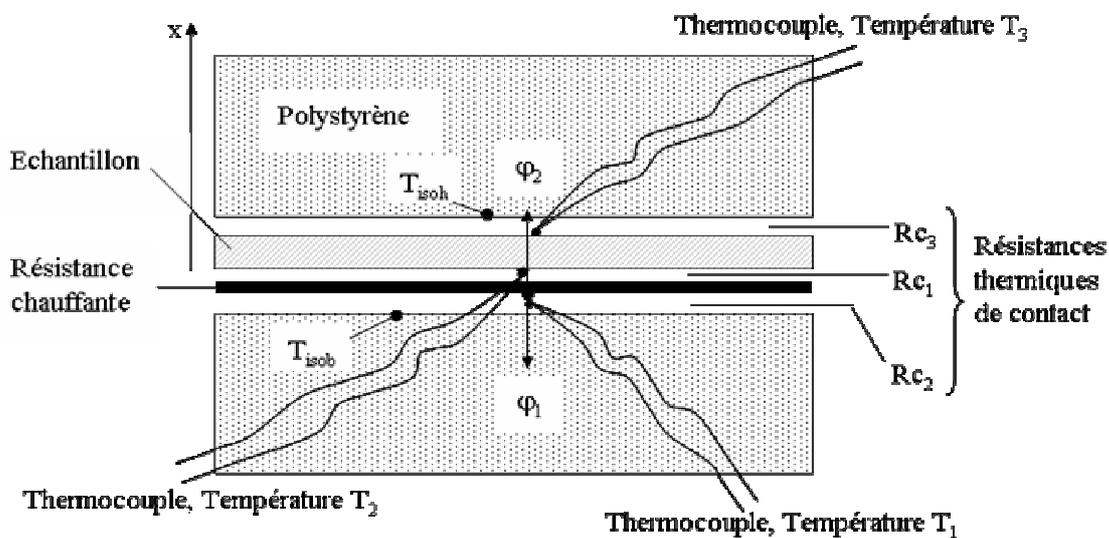


Figure 3.1 : Schéma du dispositif expérimental.

Une expérience « plan chaud » consiste à faire passer un courant électrique par l'élément chauffant (sonde) pour dégager de façon contrôlée un flux de chaleur  $\varphi_{sonde}(t)$  (effet Joule) et à suivre la réponse thermique en face avant  $T_{avant}(t)$  et face arrière  $T_{arrière}(t)$  de l'échantillon. A l'état initial, l'ensemble du dispositif expérimental se trouve en équilibre thermique avec son environnement.

Pour remonter aux propriétés thermiques de l'échantillon à partir des mesures ci-dessus, il est nécessaire de disposer d'un modèle de transferts thermiques reliant la réponse thermique en face avant  $T_{avant}(t)$  et face arrière  $T_{arrière}(t)$  de l'échantillon avec le flux de chaleur injecté  $\varphi_{sonde}(t)$ . On l'écrit ici de façon symbolique\* :

$$M(T_{avant}(t), T_{arrière}(t); \varphi_{sonde}(t), \vec{\theta}) = 0 \quad (3.5)$$

où  $\vec{\theta}$  est un vecteur de paramètres contenant la conductivité thermique  $\lambda$  et l'effusivité thermique  $E$  de l'échantillon, mais également :

\* Les détails de la modélisation sont donnés dans la deuxième partie de ce document.

- deux paramètres thermiques relatifs à la sonde chauffante (capacité et résistance thermiques) ;
- deux paramètres thermiques relatifs aux couches isolantes (conductivité et effusivité thermiques) dont les valeurs sont connues ;
- trois résistances thermiques de contact associées aux interfaces « isolant/sonde », « sonde/échantillon » et « échantillon/isolant » ;
- des coefficients convectifs tenant compte des échanges thermiques entre le dispositif et l'air environnant ;
- quelques paramètres géométriques (épaisseurs des couches isolantes, surface de la sonde, dimensions de l'échantillon) supposés connus avec certitude.

Comme montré dans le chapitre 6, les dimensions de l'échantillon, ainsi que la durée de l'expérience, sont décidées de façon à assurer la justesse de l'estimation ultérieure de  $\lambda$  et  $E$ . On essaye, entre autre, de rendre  $T_{avant}(t)$  et  $T_{arrière}(t)$  insensibles au plus grand nombre des paramètres ci-dessus. Le modèle (3.5) peut alors se réécrire:

$$M(T_{avant}(t), T_{arrière}(t); \varphi_{sonde}(t), \bar{\theta}_{connu}, \bar{\theta}_{inconnu}) = 0 \quad (3.6)$$

où les seuls paramètres inconnus, regroupés dans  $\bar{\theta}_{inconnu}$ , seraient les propriétés thermiques de l'échantillon ( $\lambda$  et  $E$ ), la capacité thermique de la sonde et la résistance thermique associée à l'interface « sonde/échantillon ». Ils sont estimés par minimisation de l'écart quadratique entre mesures et simulations :

$$\bar{\theta}_{inconnu}^* = \arg \min \left\{ \int_t (\hat{T}_{avant}(t; \bar{\theta}_{inconnu}) - T_{avant}(t))^2 dt + \int_t (\hat{T}_{arrière}(t; \bar{\theta}_{inconnu}) - T_{arrière}(t))^2 dt \right\} \quad (3.7)$$

où  $\hat{T}$  et  $T$  désignent, respectivement, les simulations et les mesures. On gardera comme indicateurs de la qualité du modèle ainsi estimé, les écarts types :

$$\sigma_x = \sqrt{\frac{1}{\Delta} \int_{t=0}^{\Delta} (\hat{T}_x(t; \bar{\theta}_{inconnu}^*) - T_x(t))^2 dt} \quad x = avant, arrière \quad (3.8)$$

et les valeurs moyennes des écarts relatifs :

$$\mu_x = \frac{1}{\Delta} \int_{t=0}^{\Delta} \left\{ \frac{\hat{T}_x(t; \bar{\theta}_{inconnu}^*) - T_x(t)}{T_x(t)} \right\} dt \quad x = avant, arrière \quad (3.9)$$

### 3.2.2. Qualité des échantillons : homogénéité et porosité

Pour juger de l'homogénéité du mélange SFG/sel dans les échantillons, on a d'abord mesuré les propriétés thermiques (conductivité et effusivité) d'un échantillon de dimensions 100x100x20mm (composite  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  - SFG 75 - 10%*m*). Cet échantillon a été ensuite découpé en trois sous échantillons de dimensions 25x25x20 mm dont les propriétés thermiques ont été également mesurées. Les résultats obtenus sont reportés dans le tableau 3.2.

	$E$ ( $J.m^{-2}.K^{-1}.s^{-1/2}$ )	$\lambda$ ( $W.m^{-1}.K^{-1}$ )	Ecart (%) par rapport à l'échantillon		Ecart (%) par rapport aux valeurs moyennes	
			en $E$	en $\lambda$	en $E$	en $\lambda$
Echantillon (100x100x20mm)	1982	2,23	-	-	1,6	2,3
Sous échantillon 1 (25x25x20mm)	1874	2,06	5,4	7,6	3,9	5,5
Sous échantillon 2 (25x25x20mm)	1950	2,18	1,6	2,2	0	0
Sous échantillon 3 (25x25x20mm)	1994	2,27	0,6	1,8	2,2	4,1
MOYENNE	1950	2,18	-	-	-	-

Tableau 3.2 : Propriétés thermiques des échantillons de  $NaNO_3/KNO_3$  – SFG 75 (10%*m*)

On observe que les écarts relatifs entre les propriétés thermiques des sous échantillons et les propriétés thermiques de l'échantillon père sont inférieurs à 8%, souvent en dessous de 2,5% (colonnes 4 et 5). Par rapport aux valeurs moyennes de conductivité et d'effusivité calculées en tenant compte de l'ensemble des mesures (échantillon père et sous échantillons), les écarts relatifs se situent entre 0 et 5,5% (colonnes 6 et 7). Comme on verra dans la section suivante, ces écarts sont du même ordre de grandeur que ceux qui peuvent être constatés en réalisant plusieurs mesures sur un même échantillon. Au regard de la précision des mesures, on peut donc conclure à l'homogénéité de la répartition des particules de SFG dans le mélange sel/SFG.

Sur les figures 3.2 et 3.3, nous avons représenté les valeurs de porosité des matériaux/échantillons testés (tableau 3.1, colonne 5). La figure 3.2 montre une tendance de la porosité à augmenter avec la quantité de graphite ajoutée : la porosité se situe entre 15 et 30% pour des échantillons avec plus de 5%*m* de SFG, tandis qu'elle reste dans la plage de 2 à 12% pour des pourcentages en masse de graphite entre 0 et 5. Il semble également que le protocole #2 contribue à améliorer la qualité des échantillons (réduction de la porosité). Par ailleurs, la figure 3.3 montre que la porosité des échantillons est d'autant plus petite que la taille des particules de graphite est grande.

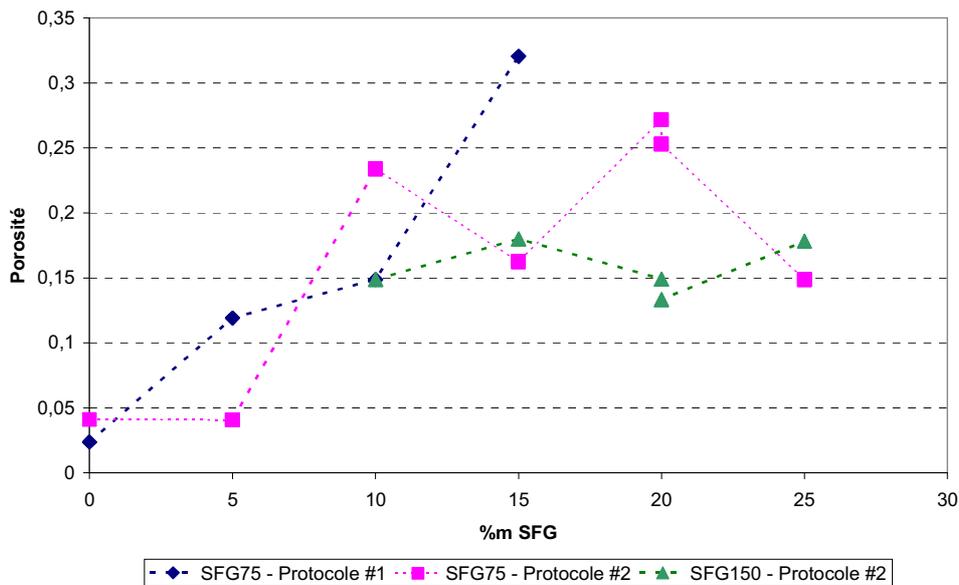


Figure 3.2 : Porosité des composites en fonction du contenu de graphite

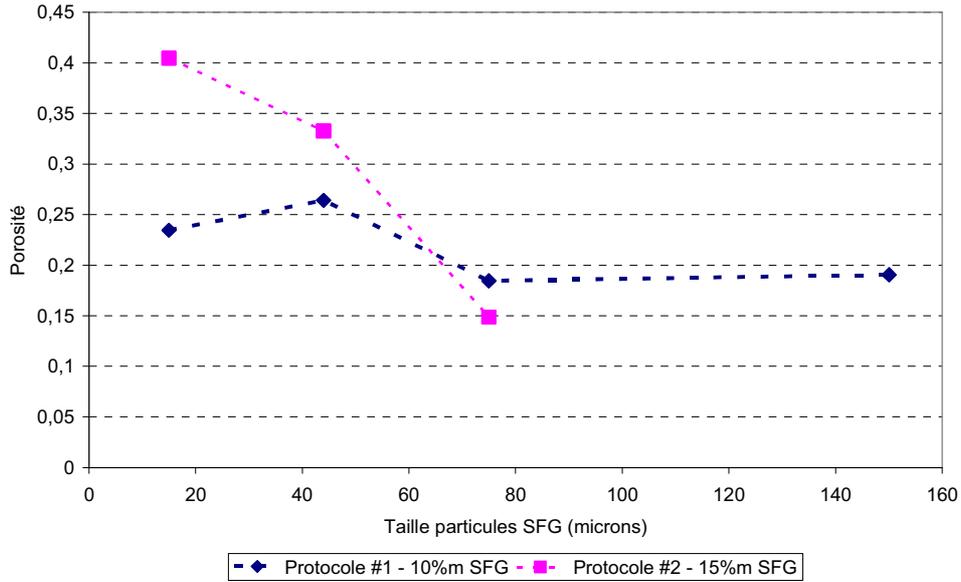
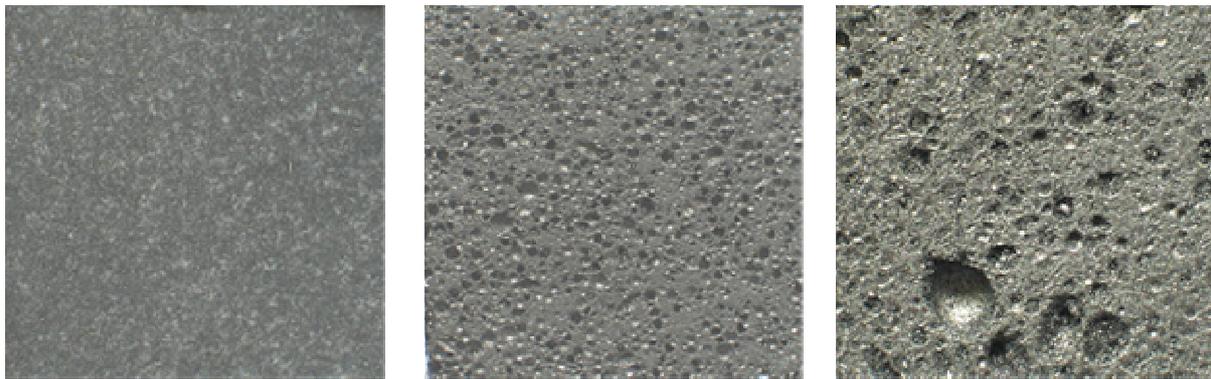


Figure 3.3 : Porosité des composites en fonction de la taille des particules de SFG

Les photographies des échantillons SFG75 / 5% / #1, SFG75 / 10% / #1 et SFG75 / 15% / #1 sur la figure 3.4, permet de constater que l'augmentation de la porosité est généralement accompagnée d'une augmentation de la taille moyenne des pores.



a) 5% m de SFG 75

b) 10% m de SFG 75

c) 15% m de SFG 75

Figure 3.4 : Etat de surface des composites  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  - SFG 75 (Protocole #1).

Les échantillons (tel que le SFG150 / 10% / #1) présentant un défaut d'élaboration (cavité d'air) qui risque de biaiser l'estimation des propriétés thermiques, seront exclus des études ultérieures.

### 3.2.3. Qualité des mesures de conductivité et d'effusivité thermiques

Sauf rare exception, trois essais « plan chaud » ont été effectués sur chacun des échantillons listés dans le tableau 3.1. On dispose donc de trois valeurs estimées de conductivité thermique et d'effusivité thermique pour chacun d'entre eux. Ces estimations vont nous permettre d'évaluer la fiabilité de la méthode de mesure utilisée.

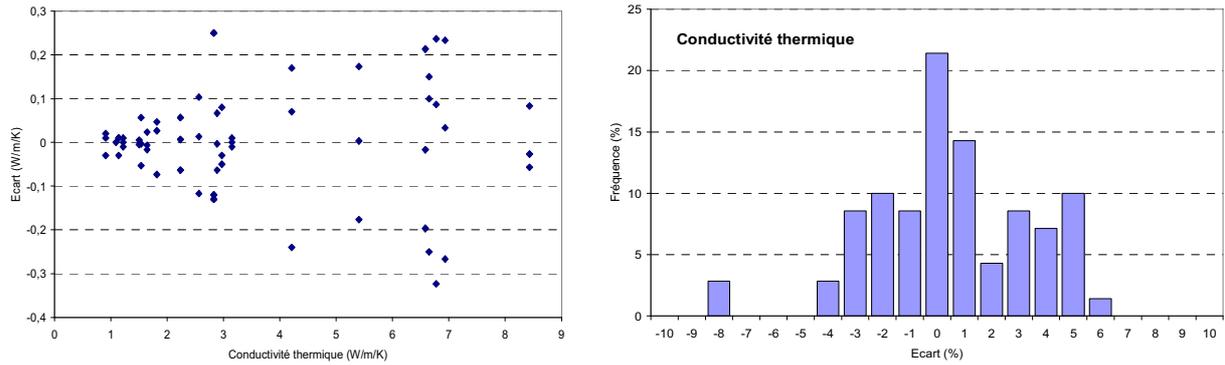


Figure 3.5 : Etude de fiabilité concernant les mesures de conductivité thermique. A gauche : valeurs mesurées face à leurs moyennes respectives. A droite : distribution de fréquences des écarts relatifs entre mesures et valeurs moyennes.

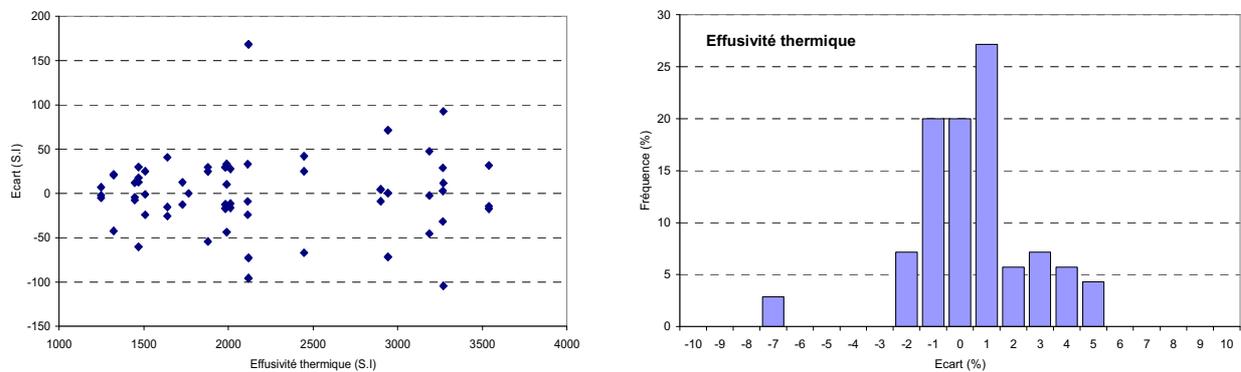


Figure 3.6 : Etude de fiabilité concernant les mesures d'effusivité thermique. A gauche : Valeurs mesurées face à leurs moyennes respectives ; A droite : Distribution de fréquences des écarts relatifs entre mesures et valeurs moyennes.

Sur la figure 3.5 à gauche, nous avons représenté l'ensemble des valeurs de conductivité thermique estimées face à leurs moyennes respectives. A droite, on trouve la distribution de fréquences correspondant aux écarts relatifs  $\varepsilon_{e,i}$  définis par :

$$\varepsilon_{e,i} = \frac{\lambda_{e,i} - \lambda_e}{\lambda_e} \times 100 \quad (3.10)$$

où  $\lambda_{e,i}$  est la  $i^{\text{ème}}$  estimation ( $i=1,2,3$ ) de la conductivité thermique de l'échantillon « e » et  $\lambda_e$  est la valeur moyenne des estimations réalisées sur ce même échantillon,  $\lambda_e = (\lambda_{e,1} + \lambda_{e,2} + \lambda_{e,3})/3$ . On constate que la variabilité dans la mesure de conductivité thermique est de 4-5% environ. Pour l'effusivité thermique (voir figure 3.6), la dispersion des mesures est généralement inférieure à 5%.

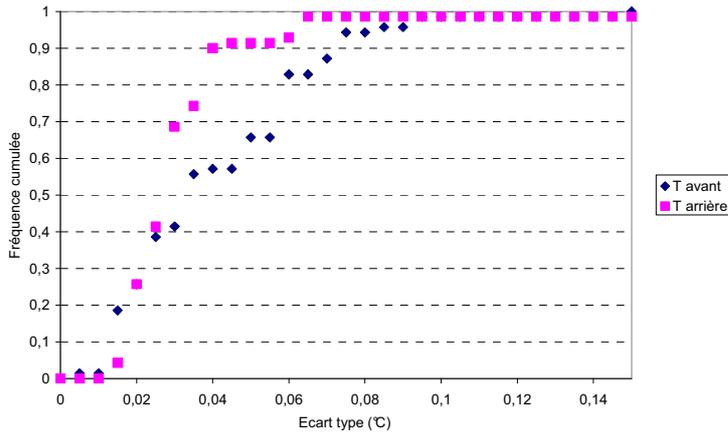


Figure 3.7 : Courbes de fréquence cumulée des écarts types observées entre les températures face avant et face arrière mesurées et les températures simulées à l'aide du modèle de transferts estimé.

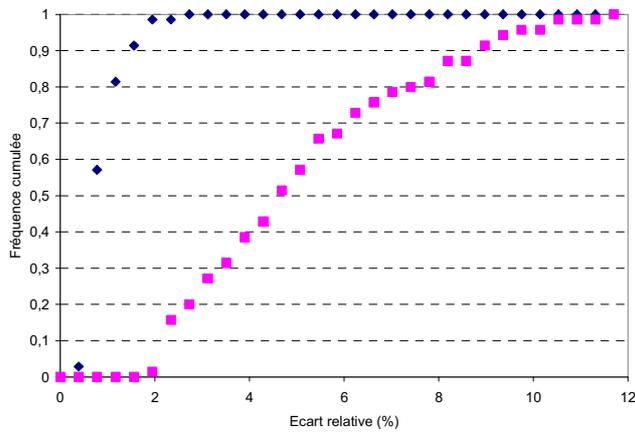


Figure 3.8 : Courbes de fréquence cumulée des moyennes des écarts relatifs observées entre les températures face avant et face arrière mesurées et les températures simulées à l'aide du modèle de transferts estimé.

Comme déjà indiqué, la qualité du modèle de transferts calé sur les observations des températures en face avant et en face arrière est mesurée à travers les écarts types  $\sigma_x$  (Eq. (3.8)) et les moyennes des écarts relatifs  $\mu_x$  (Eq. (3.9)). Pour l'ensemble des mesures effectuées (24 échantillons x 3 mesures/échantillon), les courbes de fréquences cumulées correspondant aux valeurs de  $\sigma_x$  et  $\mu_x$  ( $x = T_{avant}, T_{arrière}$ ) sont montrées sur les figures 3.7 et 3.8. Que ce soit en face avant ou en face arrière, les écarts types  $\sigma_x$  sont à 99% inférieurs à 0.1°C (fig. 3.7). Autrement dit, les écarts « modèle – mesure » sont au pire du même ordre de grandeur que la précision dans la mesure de température par thermocouples. Concernant les écarts relatifs (fig. 3.8), ils sont toujours inférieurs à 2% en face avant et plus importants en face arrière (<10% à 95%) du fait de la montée plus faible en température de l'échantillon à cet endroit.

### 3.3. Effet du graphite sur les propriétés thermiques des composites NaNO<sub>3</sub>/KNO<sub>3</sub>-SFG

Nous examinons dans cette section l'ensemble des résultats de mesure, le but étant d'analyser l'effet du graphite (quantité et taille des particules) sur les propriétés thermiques effectives des matériaux sel/SFG. Dans le tableau 3.3 sont répertoriées les valeurs moyennes (issues de trois tests par échantillon) de conductivité et d'effusivité thermiques obtenues par la méthode du plan

chaud. On rappelle que la dispersion des mesures autour de ces valeurs moyennes est généralement inférieure à 5%.

Connaissant  $\lambda$  (conductivité thermique),  $E$  (effusivité thermique) et  $\rho$  (masse volumique apparente de l'échantillon), les valeurs des capacités thermiques et celles des chaleurs massiques ont été calculées à partir de la relation existante entre conductivité et effusivité thermiques :

$$E = \sqrt{\rho c_p \lambda} \quad (3.11)$$

Matériau	Fraction volumique de SFG $\phi$	Conductivité thermique $\lambda (W.m^{-1}.K^{-1})$	Effusivité thermique $E(J.m^{-2}.K^{-1}.s^{-1/2})$	Capacité thermique $\rho c_p (J.m^{-3}.K^{-1})$	Chaleur massique $c_p (J.kg^{-1}.K^{-1})$
SFG75 / 0% /#1	0	0,91	1671,6	3070,9	1436,4
SFG75 / 5% /#1	0,0427	1,53	1989,7	2577,1	1333,9
SFG75 / 10% /#1	0,0827	2,23	2332,0	2431,9	1300,5
SFG75 / 15% /#1	0,0992	2,56	2228,7	1938,6	1296,7
SFG75 / 0% /#2	0	1,09	1764,7	2857,0	1360,5
SFG75 / 5% /#2	0,0465	1,50	1904,0	2409,1	1144,97
SFG75 / 10% /#2	0,0744	1,14	1643,7	2370,2	1408,0
SFG75 / 15% /#2	0,1223	2,83	2468,3	2153,3	1168,5
SFG75 / 20% /#2	0,1420	4,21	2797,0	1859,3	1158,6
SFG75 / 20% /#2	0,1456	5,40	3249,5	1955,7	1188,1
SFG75 / 25% /#2	0,2078	6,65	3486,7	2001,5	1116,22
SFG150 / 10% /#2	0,0827	3,15	2361,6	1770,7	946,8
SFG150 / 15% /#2	0,1197	5,44	3204,1	1885,0	1044,6
SFG150 / 20% /#2	0,1659	6,77	3619,6	1933,7	1031,2
SFG150 / 20% /#2	0,1690	6,93	3536,6	1805,2	945,2
SFG150 / 25% /#2	0,2006	8,43	3888,6	1793,1	988,6
SFG15 / 10% /#2	0,1117	2,97	2464,0	2044,4	1214,0
SFG44 / 10% /#2	0,1074	2,88	2339,3	1896,4	1171,3
SFG75 / 10% /#2	0,1190	2,83	2468,3	2153,3	1200,3
SFG150 / 10% /#2	0,1182	5,44	3204,1	1885,0	1058,45
SFG15 / 15% /#1	0,0578	1,22	1597,9	2093,0	1600,2
SFG44 / 15% /#1	0,0648	1,64	1796,5	1964,1	1339,8
SFG75 / 15% /#1	0,0827	2,23	2332,0	2431,9	1300,5

Tableau 3.3 : Résultats des mesures de propriétés thermiques.

### 3.3.1. Choix des paramètres relatifs à la microstructure

Les propriétés thermiques effectives des matériaux étudiés vont être fonction des propriétés thermiques des phases présentes (sel, graphite, air) et de leur microstructure. Les propriétés thermiques du sel, du graphite et de l'air étant prédéterminées, c'est donc l'espace occupé par chacune des phases, ainsi que leurs arrangements respectifs, qui détermine les valeurs des propriétés effectives. Notre objectif ici est de décider des paramètres relatifs à la microstructure qui sont le mieux adaptés pour expliquer les propriétés macroscopiques des matériaux sel/SFG.

Pour ce qui est de la capacité thermique, il est aisé de montrer que :

$$\rho c_p = (1 - \phi - \varepsilon) \rho_s c_{ps} + \phi \rho_g c_{pg} + \varepsilon \rho_a c_{pa} \approx (1 - \phi - \varepsilon) \rho_s c_{ps} + \phi \rho_g c_{pg} \quad (3.12)$$

où  $\rho_s c_{ps}$ ,  $\rho_g c_{pg}$  et  $\rho_a c_{pa}$  représentent la capacité thermique du sel, du graphite et de l'air, respectivement. Connaissant ces trois capacités, celle du matériau n'est donc fonction que de la fraction volumique de graphite  $\phi$  et de la porosité  $\varepsilon$ .

Pour la conductivité thermique effective (voire l'effusivité thermique), l'analyse n'est pas aussi simple. En effet, sa valeur est en général fonction des fractions volumiques des phases et de leurs agencements respectifs. Dans le cas des matériaux étudiés, où la conductivité thermique du graphite est bien plus importante que celle du sel et de l'air, on peut imaginer que la fraction volumique et la continuité spatiale de la phase graphite suffisent à expliquer la conductivité thermique apparente de l'échantillon. Par ailleurs, si on suppose que les particules de SFG dans le matériau sont aléatoirement réparties et orientées, la structure du réseau conducteur (phase graphite) sera alors essentiellement déterminée par la fraction volumique de graphite dans le matériau. On arrive donc au choix de la fraction volumique de graphite comme paramètre microstructural déterminant la conductivité thermique apparente des matériaux étudiés.

Les figures 3.9 et 3.10, où l'on a représenté la fraction volumique de graphite  $\phi$  et la porosité  $\varepsilon$  des échantillons analysés face au pourcentage en masse de graphite ajouté  $\omega$ , montrent qu'il serait dangereux de remplacer  $\phi$  par  $\omega$  dans les études relatives à la conductivité thermique apparente. En effet, bien que la corrélation entre  $\phi$  et  $\omega$  n'est pas mauvaise (fig. 3.9), deux échantillons de même  $\omega$  peuvent avoir des valeurs de porosité significativement différentes (fig. 3.10). Il est donc préférable de travailler avec la fraction volumique  $\phi$  car elle ne tient compte que de l'espace occupé par la phase conductrice. On notera qu'il existe une corrélation linéaire parfaite entre  $\phi$  et la densité apparente de SFG dans le composite  $\rho_{ag}$  (eq. (3.2)), ce qui revient à dire que ces deux paramètres sont interchangeables. On travaillera par la suite avec  $\phi$ .

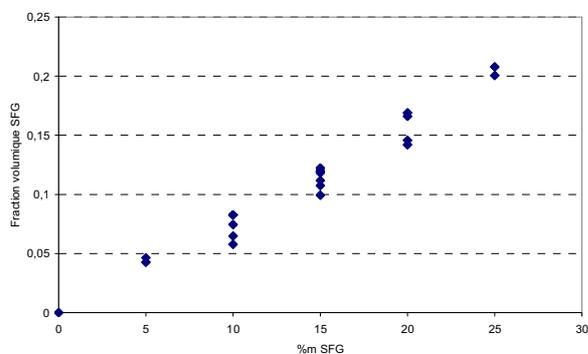


Figure 3.9 : Fraction volumique de SFG face au pourcentage en masse de SFG ajouté au sel.

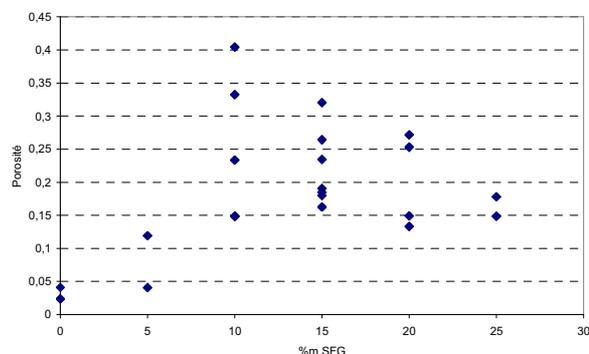


Figure 3.10 : Porosité de l'échantillon face au pourcentage en masse de SFG ajouté au sel.

### 3.3.2. Effet de la quantité de graphite ajoutée

Les résultats des mesures effectuées (24 échantillons x 3 tests/échantillons) sont représentés sur les figures 3.11 à 3.14. Elles montrent l'évolution des propriétés thermiques des matériaux sel/SFG (conductivité thermique, fig. 3.11 ; effusivité thermique, fig. 3.12 ; capacité thermique, fig. 3.13 ; et chaleur massique, fig. 3.14) en fonction de la fraction volumique de SFG caractérisant le composite.

Les conclusions générales qui découlent de l'examen de ces graphiques sont :

- La conductivité thermique effective  $\lambda$  des matériaux sel/SFG augmente progressivement avec la fraction volumique de graphite  $\phi$ . La conductivité thermique à  $\phi=0$  (sel) est égale à  $1 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  environ (à noter l'accord avec la valeur fournie par la littérature [4]). Elle prend des valeurs entre 1 et  $2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour des fractions volumiques de graphite comprises entre 0 et 0.075 et se situe dans l'intervalle  $2-3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour  $0.075 < \phi \leq 0.12$ . Sur la plage de valeurs de  $\phi$  comprises entre 0.12 et 0.15, la conductivité thermique augmente significativement (presque un saut). Elle atteint des valeurs de  $7-8 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  sur l'intervalle  $0.15 < \phi \leq 0.21$ .
- La variation de l'effusivité thermique effective  $E$  avec la fraction volumique de graphite présente une allure tout à fait semblable à celle décrite ci-dessus pour la conductivité thermique, avec également un taux d'augmentation d'effusivité plus marqué sur l'intervalle  $0.12 < \phi \leq 0.15$ .
- La capacité thermique effective des matériaux SFG/sel diminue progressivement avec la fraction volumique de graphite, très fortement sur l'intervalle  $0 < \phi \leq 0.12$ . Sur la figure 3.15, nous avons représenté l'ensemble de capacités thermiques mesurées (carrés en rose, même données que dans la figure 3.13), ainsi que les capacités thermiques calculées à partir de l'équation (3.12) avec  $\rho_s c_{ps} = 3131700 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  [46] et  $\rho_g c_{pg} = 2260000 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  [47] (diamants en bleu). On remarque la bonne concordance entre les valeurs mesurées et les valeurs calculées, ce qui nous conforte vis-à-vis de la qualité des mesures.
- De même, la chaleur massique effective des composites tend à diminuer avec la l'augmentation de la fraction volumique de graphite, cette fois-ci de façon presque linéaire. Comme précédemment, la figure 3.16 permet de comparer les valeurs des chaleurs massiques estimées à partir des mesures de  $\rho$ ,  $\lambda$  et  $E$  (carrés en rose, mêmes données que sur la figure 3.14) avec celles qui ont été obtenues en divisant la capacité thermique calculée à partir de l'équation (3.12) par la masse volumique apparente  $\rho$  des échantillons. Avec plus de dispersion qu'auparavant, on trouve encore une fois une concordance acceptable entre mesures et modèle.

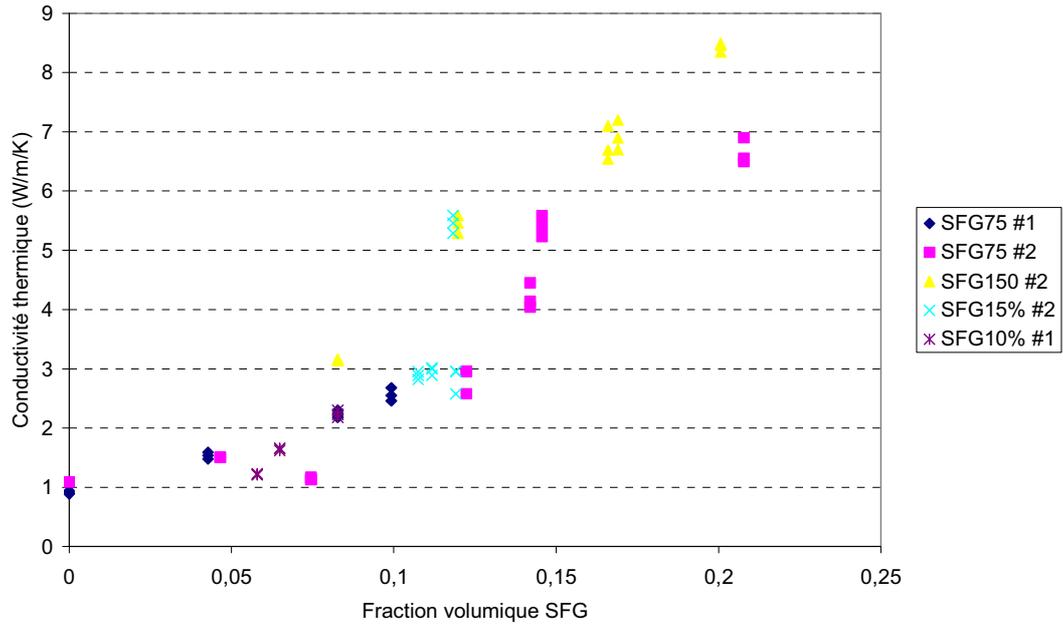


Figure 3.11 : Evolution de la conductivité thermique effective avec la fraction volumique de graphite.

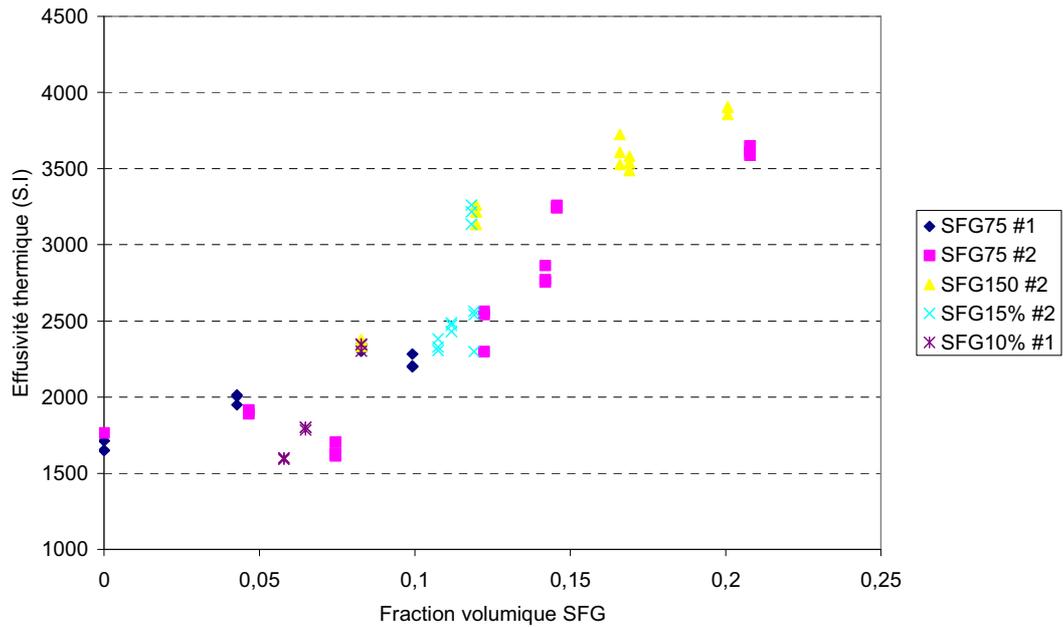


Figure 3.12 : Evolution de l'effusivité thermique effective avec la fraction volumique de graphite.

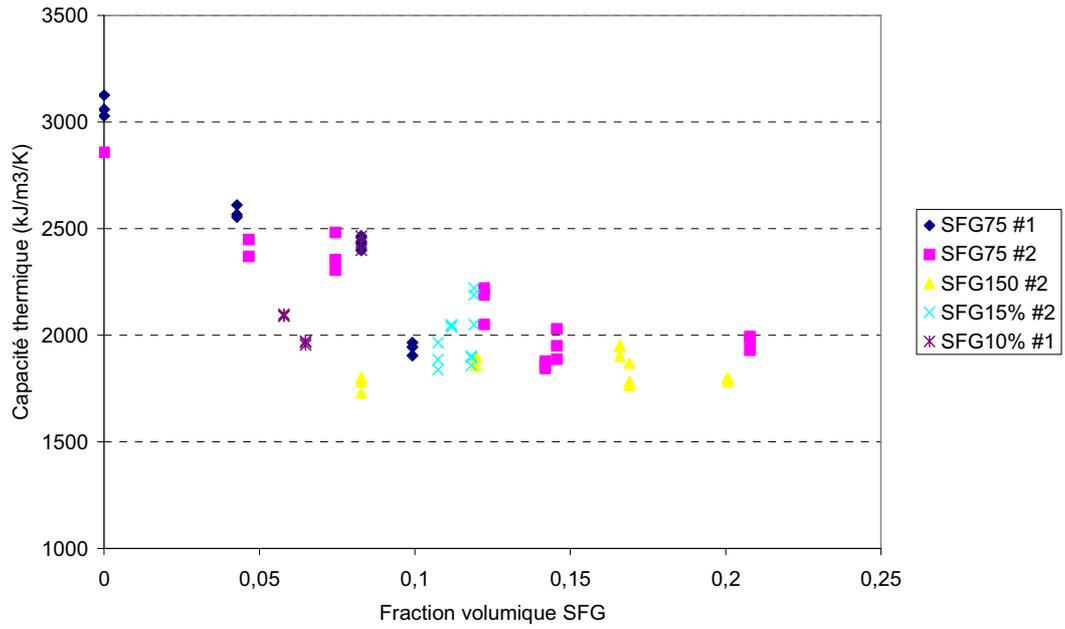


Figure 3.13 : Evolution de la capacité thermique effective avec la fraction volumique de graphite.

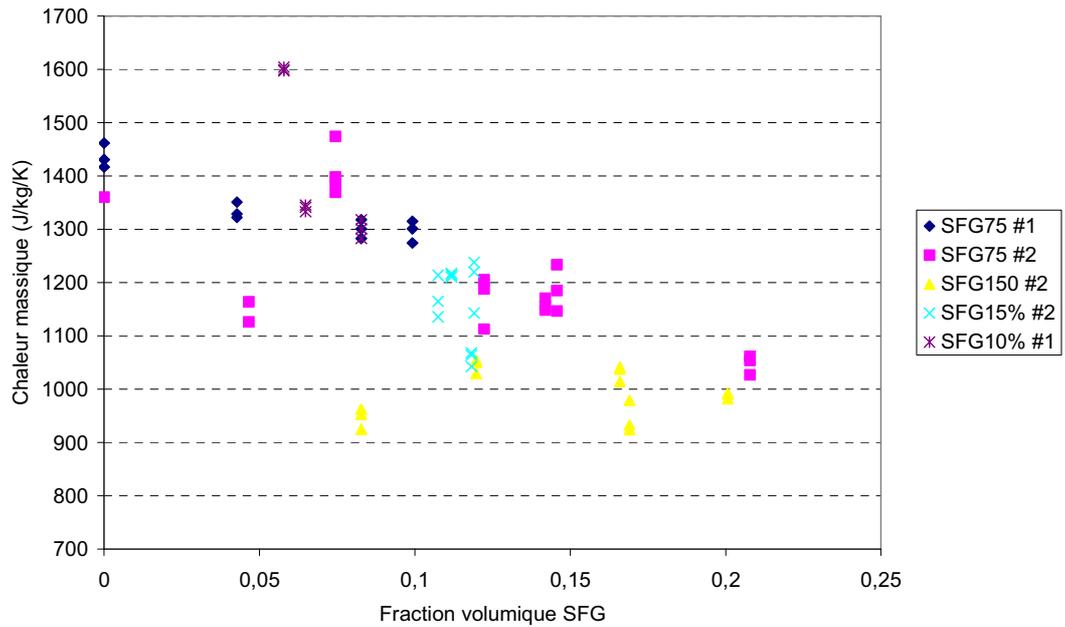


Figure 3.14 : Evolution de la chaleur massique effective avec la fraction volumique de graphite.

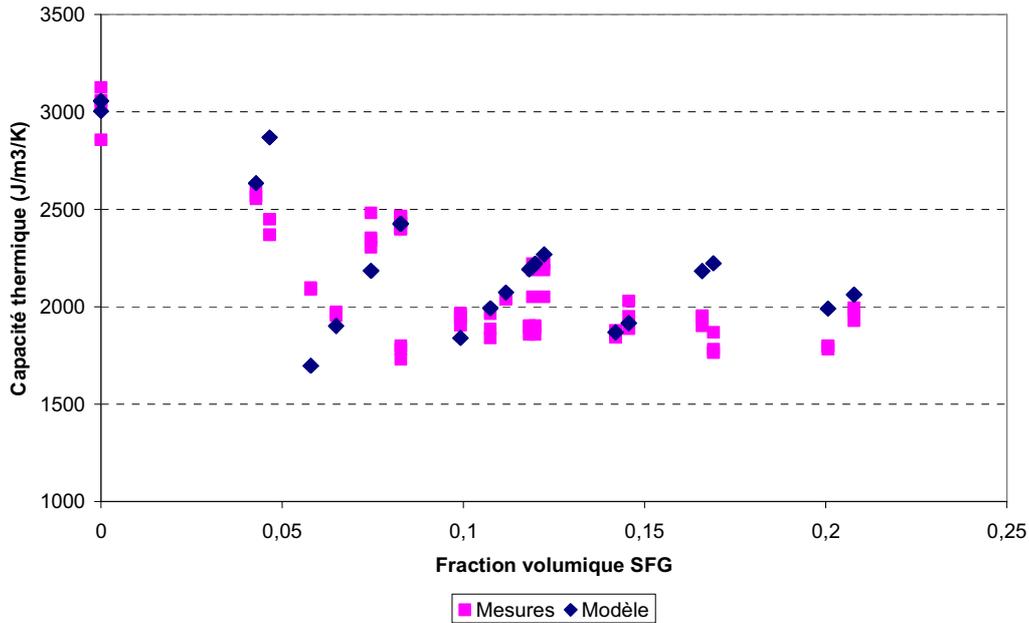


Figure 3.15 : Evolution de la capacité thermique effective avec la fraction volumique de graphite. Comparaison modèle – mesures.

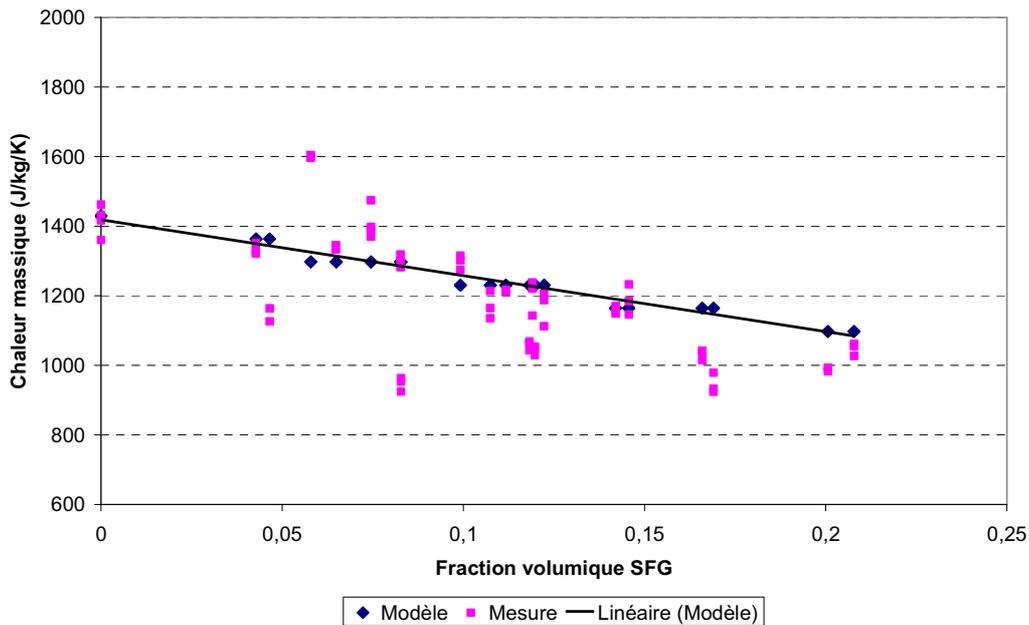


Figure 3.16 : Evolution de la chaleur massique effective avec la fraction volumique de graphite. Comparaison modèle – mesures.

### 3.3.3. Effet de la taille des particules de graphite

Nous reprenons ici les données de conductivité thermique représentées sur la figure 3.11 pour étudier l'effet potentiel de la taille des particules de SFG sur les propriétés conductrices des composites SFG/Sel. Pour faciliter l'analyse, nous avons éclaté en deux le contenu de la figure 3.11 (figures 3.17 et 3.18).

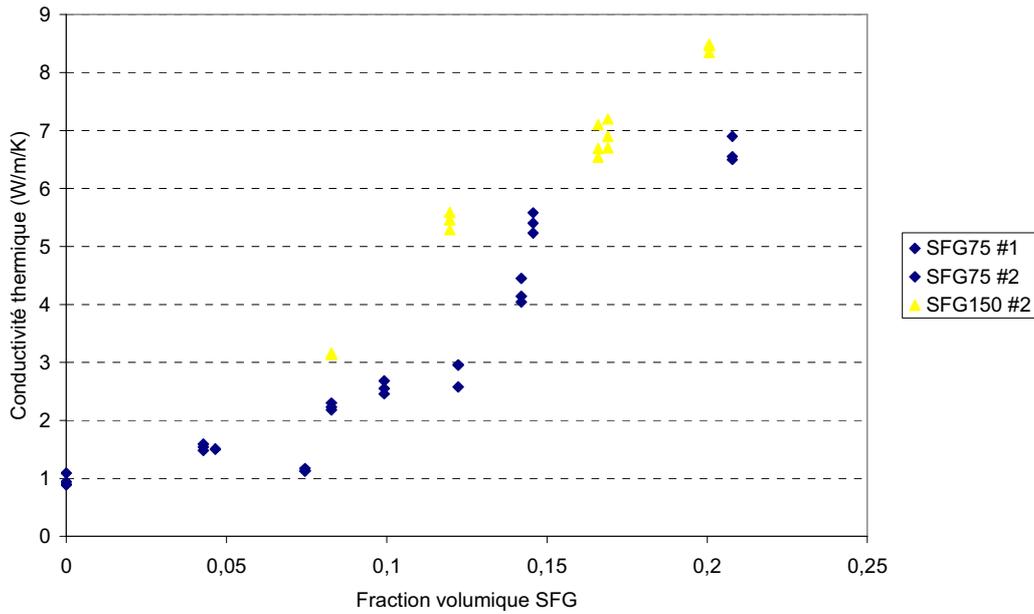


Figure 3.17 : Evolution de la conductivité thermique effective avec la fraction volumique de SFG75 (protocoles #1 et #2) et de SFG150 (protocole #2).

Les points « conductivité thermique – fraction volumique » en bleu sur la figure 3.17 correspondent à des composites élaborés avec des particules de SFG de 75  $\mu\text{m}$  de taille moyenne, tandis que les points en jaune correspondent à des composites contenant du SFG à 150  $\mu\text{m}$ . Indépendamment du protocole d'élaboration, on peut apprécier un bon alignement des points en bleu (SFG75) sur une même courbe d'évolution de la conductivité thermique en fonction de la fraction volumique de SFG. Par contre, les points en jaune (SFG150) se situent systématiquement au dessus de cette courbe de tendance. La relation « conductivité thermique – fraction volumique de graphite » semble être fonction de la taille des particules : pour une même fraction volumique de SFG, la conductivité thermique effective serait d'autant plus élevée que la taille des particules de graphite est importante.

La figure 3.18 contient les points « conductivité thermique - fraction volumique de graphite » correspondants à deux séries d'échantillons. La première série (points en bleu) est issue de la dispersion (protocole n°1) de 10% $\text{m}$  de SFG dans le sel. Elle comporte trois échantillons avec des tailles de particules de SFG de 15, 44 et 75 $\mu\text{m}$ . La deuxième série (points en jaune), obtenue en dispersant (protocole n°2) une quantité plus importante de graphite (15% $\text{m}$ ) dans le sel, est constituée par 4 échantillons dont la taille moyenne des particules de SFG est 14, 44, 75 et 150 $\mu\text{m}$  respectivement.

Pour les composites avec des particules de graphite de taille inférieure ou égale à 75 $\mu\text{m}$ , on observe une progression des valeurs de conductivité thermique qui pourrait s'expliquer par l'augmentation correspondante de la fraction volumique de SFG. Par contre, le composite SFG150 / 15% / #2 sort nettement de cette tendance pour afficher une conductivité thermique presque 2 fois plus importante que celle des composites à valeur de fraction volumique de SFG semblable.

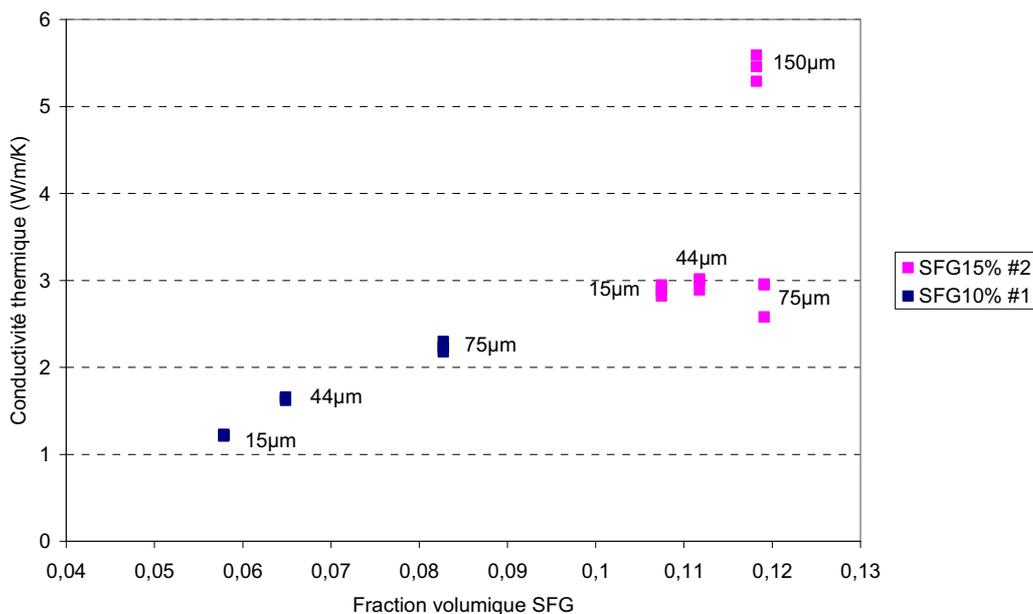


Figure 3.18 : Evolution de la conductivité thermique effective avec la fraction volumique de SFG. Carrés en bleu : Composites avec 10% de SFG15, SFG44 et SFG75 ; Carrés en rose : Composites avec 15% de SFG15, SFG44, SFG75 et SFG150.

Il semblerait qu'à partir d'une certaine valeur seuil, la taille des particules de SFG ait une influence sur la conductivité thermique effective des composites SFG/sel. Nous reviendrons sur ce point dans la section suivante.

### 3.4. Modélisation des propriétés thermiques de composites $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$ – SFG

Notre objectif dans cette section est de mieux comprendre les observations expérimentales présentées dans la section précédente. Autant nous avons montré qu'un simple modèle de mélange permet de reconstituer correctement les valeurs des capacités thermiques effectives observées ; autant nous nous sommes limités à montrer qu'il existe une corrélation significative entre la conductivité thermique effective et la fraction volumique de graphite. Nous tenterons ici de formaliser ces rapports et d'approfondir par ce biais la compréhension de l'effet du SFG (quantité, taille de particules) sur la conductivité effective des composites SFG/sel.

La modélisation des propriétés effectives de transfert (voir transport) de milieux hétérogènes a fait l'objet de maints travaux de recherche tout au long du 20<sup>ème</sup> siècle et reste encore un sujet d'actualité. L'ouvrage de S. Torquato [49], publié en 2002, en donne la preuve. Il s'agit d'un apport inestimable à la compréhension des relations existantes entre microstructure et propriétés macroscopiques de milieux hétérogènes aléatoires, qui retrace en détail les évolutions marquantes dans le domaine.

Comme nous l'avons déjà dit, les matériaux SFG/Sel étudiés sont des matériaux hétérogènes triphasiques (sel, graphite, air) aléatoires. Leur conductivité thermique effective sera le résultat des conductivités thermiques des phases et de la microstructure du milieu, cette dernière étant fonction

des fractions volumiques des phases, de la taille et de la morphologie des « particules »<sup>†</sup> et de leur degré de coordination (nombre moyen de contact entre particules d'une même phase). Cependant, la complexité micro structurale des matériaux SFG/Sel écarte la possibilité d'aborder par voie analytique la recherche de modèles de conductivité thermique effective. Par conséquent, un certain nombre de simplifications, d'approximations et d'hypothèses seront nécessaires. Comme nous le montrerons ensuite, la théorie de milieux effectifs généralisée (TMEG) offre un cadre intéressant pour essayer d'appréhender ce problème.

Nous rappelons dans les sections 3.4.1 et 3.4.2, les théories de percolation et des milieux effectifs de Bruggeman, pour introduire ensuite la TMEG (section 3.4.3). Cette façon d'amener la TMEG nous permettra de cerner le sens du modèle de McLachlan (TMEG), introduit soit comme une interpolation heuristique entre un milieu de Bruggeman symétrique et un milieu de Bruggeman asymétrique, soit comme un raccordement asymptotique entre deux milieux percolant. La dernière section contient l'application de la TMEG à nos matériaux.

### 3.4.1. La théorie de la percolation et des fonctions d'échelle

La théorie de la percolation (TP) est reconnue comme étant un outil mathématique puissant de description des propriétés physiques de milieux hétérogènes aléatoires à proximité de leur composition critique (cf. [50-55]). Elle préconise que la conductivité thermique effective d'un milieu infini constitué par un mélange aléatoire de grains conducteurs avec des grains isolants est telle que :

$$\lambda \propto |\phi - \phi_c|^t; \quad \phi \rightarrow \phi_c^+ \quad (3.13)$$

où  $\phi$  est la fraction volumique de la phase conductrice et  $\phi_c$  le seuil dit de percolation, c'est-à-dire la valeur minimale de  $\phi$  requise pour que la phase conductrice forme un premier réseau infini. Nous rappelons que pour  $\phi < \phi_c$  le milieu se comporte comme un isolant au niveau macroscopique ( $\lambda = 0$ ). L'exposant  $t$  reçoit le nom d'exposant critique. Sa valeur est indépendante de la microstructure du milieu (forme de particules, nombre de coordination, type de désordre ...), elle ne dépend que de la dimension du problème. Par exemple, la valeur de  $t$  est proche de 2 pour un milieu tridimensionnel.

Bien que puissante, la TP ne s'adresse qu'au cas limite où l'une des phases est un isolant parfait et la composition du milieu est proche du seuil de percolation ( $\phi \approx \phi_c$ ). La possibilité de représenter des milieux réels reste donc limitée. C'est à partir des années 70, qu'un élargissement de la TP via des fonctions dites d'échelle a été proposé (cf. [56,57]). Dans ce nouveau cadre, la conductivité thermique effective d'un milieu aléatoire à deux phases est donnée par :

---

<sup>†</sup> « Particule » est le nom générique que l'on va utiliser pour faire référence aussi bien à un pore (phase air), qu'à un grain de sel, qu'à une lamelle de SFG.

$$\lambda = \begin{cases} \lambda_h \left( \frac{\phi_c - \phi}{\phi_c} \right)^t F_-(x_-) & \phi < \phi_c \\ \lambda_h \left( \frac{\phi - \phi_c}{1 - \phi_c} \right)^t F_+(x_+) & \phi > \phi_c \end{cases} \quad (3.14)$$

avec :

$$x_- = (\lambda_l / \lambda_h) \left( \frac{\phi_c}{\phi_c - \phi} \right)^{s+t} ; \quad x_+ = (\lambda_l / \lambda_h) \left( \frac{1 - \phi_c}{\phi - \phi_c} \right)^{s+t} \quad (3.15)$$

$\lambda_l$  et  $\lambda_h$  représentent les conductivités thermiques de la phase « isolante » (mauvais conducteur) et de la phase « conductrice » (bon conducteur) respectivement.  $x_-$  et  $x_+$  sont appelés paramètres d'échelle. Quant aux fonctions  $F_+$  et  $F_-$ , nommées fonctions d'échelle, elles vérifient :

$$F_+(x_+) = 1, \text{ pour } x_+ \ll 1$$

et

$$F_-(x_-) = x_-, \text{ pour } x_- \ll 1$$

Quelles que soient les valeurs de  $\lambda_l$ ,  $\lambda_h$ ,  $s$ ,  $t$  et  $\phi_c$ , les fonctions  $F_+$  et  $F_-$  se superposent donc dans la région  $x_-, x_+ \gg 1$ . Elles deviennent  $F_+ = F_- = Kx^{t/(s+t)}$  [56]. Par ailleurs, on constatera que  $F_+(x_+) = 1$  et  $x_+ = (\lambda_l / \lambda_h)$  pour  $\phi = 1$  et  $F_-(x_-) = (\lambda_l / \lambda_h)$  et  $x_- = (\lambda_l / \lambda_h)$  pour  $\phi = 0$ .

Par rapport à la valeur de  $\phi$ , on peut donc distinguer trois régions concernant les lois qui gouvernent la conductivité thermique effective du milieu :

$$\lambda \approx \begin{cases} \lambda_l \left( \frac{\phi_c - \phi}{\phi_c} \right)^s & \phi < \phi_c - \Delta\phi \\ K \lambda_l^{s/(s+t)} \lambda_h^{t/(s+t)} & \phi_c - \Delta\phi \leq \phi \leq \phi_c + \Delta\phi \\ \lambda_h \left( \frac{\phi - \phi_c}{1 - \phi_c} \right)^t & \phi > \phi_c + \Delta\phi \end{cases} \quad (3.16)$$

avec  $\Delta\phi = (\lambda_l / \lambda_h)^{1/(s+t)}$ . La région  $[\phi_c - \Delta\phi, \phi_c + \Delta\phi]$  est dite région critique ou région de transition.  $s$  et  $t$  sont des exposants caractérisant les lois en puissance qui décrivent les conductivités thermiques en dehors de la région critique.

On notera enfin que les fonctions  $F_+$  et  $F_-$  ne seront des véritables fonctions d'échelle (au sens de la théorie de la percolation) que si elles sont universelles : tous les systèmes de percolation ( $\lambda_l / \lambda_h \ll 1$ ) appartenant à une même classe ont les mêmes fonctions d'échelle  $F_+$  et  $F_-$ . Ceci implique également le caractère universel des exposants  $s$  et  $t$ . Nous reviendrons plus tard sur ce point.

### 3.4.2. Les théories des milieux effectifs de Bruggeman

Tout comme la TP, les théories des milieux effectifs (TME) ont montré leur capacité à représenter une large variété de milieux (cf. [58]). Les articles de synthèse [59, 60] apportent une description détaillée des TME et de leurs évolutions. Ces théories assument que chaque « particule » dans le mélange est entourée par un milieu homogène équivalent dont la conductivité serait égale à la conductivité effective du milieu hétérogène étudié. Elles s'adressent à des milieux hétérogènes dont :

- a) Les phases recouvrent entièrement le milieu. En toute rigueur, ceci implique une distribution infinie des tailles des « particules ». Néanmoins, on observe en pratique une bonne concordance entre les prédictions des TME et les mesures pour des milieux où la taille des particules est distribuée sur un intervalle relativement étroit de valeurs (cf. [58]).
- b) Le nombre de « particules » est suffisamment élevé pour que le milieu autour d'une « particule » puisse être considéré homogène en moyenne.
- c) Les « particules » appartenant à une même phase, bien que de tailles différentes, se ressemblent fortement du point de vue morphologique.
- d) L'orientation des « particules » est aléatoire, le milieu étant isotrope au niveau macroscopique.

Parmi les TME, celles des milieux symétriques et asymétriques de Bruggeman (cf. [59, 60]), généralisées ensuite par le modèle de McLachlan (TMEG) [61,62], ont eu un grand succès. Bien qu'applicables à des milieux comportant  $n > 2$  phases, nous limitons notre présentation au cas de milieux biphasiques. Un milieu asymétrique de Bruggeman est caractérisé par une micro structure où l'une des phases mouille ou recouvre complètement l'autre (fig. 3.19, centre). On parle alors d'une phase hôte et d'une phase dispersée. La conductivité effective du milieu  $\lambda$  préconisée par la théorie de Bruggeman est :

$$\frac{(\lambda - \lambda_d)^\alpha}{\lambda} = (1 - \phi_d)^\alpha \frac{(\lambda_h - \lambda_d)^\alpha}{\lambda_h} \quad (3.17)$$

$\lambda_d$  est la conductivité thermique de la phase dispersée et  $\lambda_h$  celle de la phase hôte.  $\phi_d$  représente la fraction volumique de la phase dispersée et  $\alpha$  est un paramètre qui dépend de la forme des particules de cette phase. Pour des particules sphériques (disques en 2D), des ellipsoïdes orientés dans une direction particulière et des ellipsoïdes orientés aléatoirement, des relations formelles ont été établies entre  $\alpha$  et la morphologie des particules (cf. [59]).

A l'opposé des milieux asymétriques, dans les milieux symétriques de Bruggeman aucune des deux phases ne recouvre l'autre (fig. 3.19, gauche). La conductivité thermique effective  $\lambda$  est alors donnée par :

$$(1 - \phi) \frac{\lambda_l - \lambda}{\lambda_l + A\lambda} + \phi \frac{\lambda_h - \lambda}{\lambda_h + A\lambda} = 0 \quad (3.18)$$

où  $\lambda_l$  et  $\lambda_h > \lambda_l$  représentent la conductivité thermique de la phase « isolante » (mauvais conducteur) et de la phase « conductrice » (bon conducteur) respectivement.  $\phi$  est la fraction volumique de la

phase « conductrice » et  $A$  est un paramètre qui ne dépend que de la morphologie des particules mélangées. Par exemple, pour des particules sphériques (voire disques en 2D),  $A = 2$  (1) .

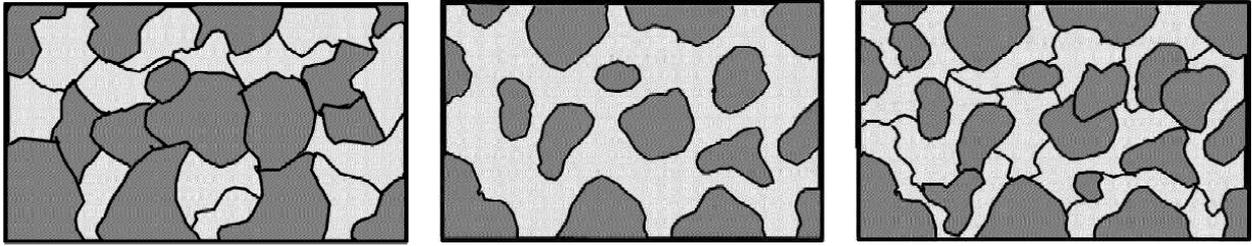


Figure 3.19 : Distribution de phases dans un milieu binaire. A gauche : milieu symétrique de Bruggeman. Au centre : milieu asymétrique de Bruggeman. A droite : milieu intermédiaire.

On notera que pour des milieux asymétriques avec des particules isolantes dispersées ( $\lambda_d = 0$ ) dans une phase conductrice et pour des milieux asymétriques avec des particules à  $\lambda_d \rightarrow \infty$  dispersées dans une phase à conductivité thermique finie, l'équation (3.17) devient :

Milieu asymétrique ( $\lambda_d = 0$ )	$\lambda = \lambda_h(1 - \phi_d)^{-m_h}$ ; $m_h = \alpha / (\alpha - 1)$
Milieu asymétrique ( $\lambda_d \rightarrow \infty$ )	$\lambda = \lambda_h(1 - \phi_d)^{-m_i}$ ; $m_i = \alpha$

Ces relations ont permis de donner un sens aux exposants  $\alpha$  et d'établir des rapports formels entre les paramètres  $m_{h,i}$  et la morphologie des particules dispersées [59]. Sans rentrer dans le détail, on signalera que pour des particules dispersées en forme d'ellipsoïdes aplatis (disques), plus le disque est allongé (voire l'espace entre les disques), plus la valeur de  $m_h$  (voire  $m_i$ ) est grande.

### 3.4.3. La théorie des milieux effectifs généralisés

Tandis que les TME de Bruggeman ont été dérivées formellement, la TEMG est le résultat d'un raisonnement empirique qui naît de la volonté d'étendre la TME à des milieux intermédiaires entre les milieux symétriques et asymétriques (fig. 3.19, gauche). Elle a été introduite par McLachlan à la fin des années 80 [58,61,62]. Sa pertinence a été montrée au travers de nombreuses applications et sa justification a été établie au travers de l'étude de cas limites qui permettent de la faire converger vers des théories bien établies (TME symétrique ou asymétrique, réseaux de résistances en parallèle ou en série, ...). Bien qu'elle soit apparue comme étant un moyen efficace d'« interpoler » dans le cadre de TME, des travaux plus récents [63-70] ont montré l'existence des liens profonds entre la TEMG et la théorie de percolation élargie que nous avons introduit précédemment.

#### Modèle de McLachlan

Nous présentons ici le modèle de McLachlan dans sa version la plus générale (cf. [63, 64]), la version originelle [61,62] n'étant qu'un cas particulier. L'équation proposée pour décrire la conductivité (thermique ou électrique) effective  $\lambda$  d'un milieu hétérogène (biphasique) aléatoire est :

$$(1 - \phi) \frac{\lambda_l^{1/s} - \lambda^{1/s}}{\lambda_l^{1/s} + A\lambda^{1/s}} + \phi \frac{\lambda_h^{1/t} - \lambda^{1/t}}{\lambda_h^{1/t} + A\lambda^{1/t}} = 0 \quad (3.19)$$

où les indice  $l$  et  $h$  désignent respectivement la phase « isolante » (mauvais conducteur) et la phase « conductrice » (bon conducteur). Comme auparavant,  $\phi$  est la fraction volumique de la phase « conductrice » et  $A = (1 - \phi_c) / \phi_c$ . On peut vérifier aisément que cette équation se réduit à celle de Bruggeman symétrique (eq. (3.18)) quand  $s = t = 1$ , et adopte la forme de l'équation de Bruggeman asymétrique pour les cas limites  $\phi_c = 0$  et  $\phi_c = 1$ . Bien qu'elle puisse converger dans cette forme là, l'équation (3.19) ne représente pas en réalité un milieu effectif. En effet, pour  $\lambda_l = 0$  et  $\lambda_h \rightarrow \infty$  (avec  $\phi_c \neq 0, 1$ ) on retrouve bien les lois en puissance caractéristiques de la percolation :

$$\begin{cases} \lambda_l = 0 & \lambda = \lambda_h \left( \frac{\phi - \phi_c}{1 - \phi_c} \right)^t & \phi > \phi_c \\ \lambda_h \rightarrow \infty & \lambda = \lambda_l \left( \frac{\phi_c}{\phi_c - \phi} \right)^s & \phi < \phi_c \end{cases} \quad (3.20)$$

Ceci permet de présenter la TMEG (modèle de McLachlan) comme étant un raccordement asymptotique entre deux équations de percolation et de donner un sens aux exposants  $s$  et  $t$ .

On peut aller encore plus loin dans ce rapprochement et montrer que l'équation (3.19) rentre dans le cadre de la théorie de percolation élargie et qu'elle fournit une définition analytique des fonctions d'échelle. On considère les fonctions données par :

$$\begin{aligned} F_+(x_+) &= \frac{\lambda(\lambda_h, \lambda_l, s, t, \phi_c, \phi)}{\lambda_h} \left( \frac{1 - \phi_c}{\phi - \phi_c} \right)^t \\ F_-(x_-) &= \frac{\lambda(\lambda_h, \lambda_l, s, t, \phi_c, \phi)}{\lambda_h} \left( \frac{\phi_c}{\phi_c - \phi} \right)^t \end{aligned} \quad (3.21)$$

où  $\lambda$  est défini par l'équation (3.19) et  $x_+$  et  $x_-$  sont donnés par les équations (3.15). Les facteurs  $1 - \phi_c$  dans  $F_+(x_+)$  et  $\phi_c$  dans  $F_-(x_-)$  assurent alors :

$$\begin{aligned} F_+(x_+) &= 1 & x_+ \ll 1 \\ F_-(x_-) &= x_- & x_- \ll 1 \end{aligned}$$

Ceci implique la superposition de  $F_+(x_+)$  et  $F_-(x_-)$ , pour toute valeur de  $\lambda_h$ ,  $\lambda_l$ ,  $s$ ,  $t$  et  $\phi_c$ , quand  $x_+, x_- \ll 1$ . De plus on peut vérifier que :

$$\begin{aligned} \phi = 1 &\Rightarrow F_+(x_+) = 1; & x_+ &= \lambda_l / \lambda_h \\ \phi = 0 &\Rightarrow F_-(x_-) = \lambda_l / \lambda_h; & x_- &= \lambda_l / \lambda_h \end{aligned}$$

Les équations (3.21) vérifient donc les propriétés des fonctions d'échelle. On remarquera que le modèle (3.19) peut s'écrire également à travers les équations (3.14), (3.15) et (3.21).

La version originale du modèle de McLachlan est donnée par l'équation (3.19) avec  $s = t$ . C'est celle que nous utiliserons ci-après.

### 3.4.4. Application de la théorie des milieux effectifs généralisés aux composites SFG/sel

Nous avons appliqué la TMEG (équation (3.19), avec  $s = t$ ) aux mesures de conductivité thermique des matériaux SFG/Sel. Les résultats sont obtenus en initialisant les paramètres du modèle par une méthode de type Monte Carlo sur 1000 points et en ajustant ensuite l'équation (3.19) aux mesures disponibles à l'aide d'un algorithme de recherche local à partir de chacun de ces points. Les résultats apparaissent dans le tableau 3.4. La première ligne correspond à des matériaux élaborés avec des particules de SFG de 75 $\mu\text{m}$  de taille moyenne (SFG75 ; protocoles n°1 et n°2), tandis que la deuxième se rapporte aux matériaux élaborés avec du SFG150.

$\lambda_l (W.m^{-1}.K^{-1})$	$\lambda_h (W.m^{-1}.K^{-1})$	$\phi_c$	$t = s$	$m_h$	$m_l$
1.17	16.76	0.1147	0.4041	3.5235	0.4564
0.93	19.08	0.0724	0.4346	6.0030	0.4685

Tableau 3.4 : Paramètres du modèle de McLachlan estimés à partir des mesures de conductivité thermique des composites SFG75/Sel (1<sup>ère</sup> ligne) et SFG150 (2<sup>ème</sup> ligne).

On constate que les valeurs identifiées pour la conductivité thermique du sel ( $\lambda_l$ ) sont proches des valeurs mesurées par ailleurs ( $\lambda_l \approx 1 W.m^{-1}.K^{-1}$ ). En comparant les résultats obtenus sur les composites SFG75 et SFG150, on constate :

- Une toute légère augmentation de la conductivité thermique  $\lambda_h$  de la phase conductrice (graphite plus air) avec l'augmentation de la taille des particules. Ceci est en cohérence avec les observations de la figure 3.3, qui montrent une diminution de la porosité avec la taille des lamelles de SFG. De plus, on pourrait expliquer l'augmentation de  $\lambda_h$  par une plus grande continuité de la phase graphite. En effet, pour une même fraction volumique de SFG, plus la taille des particules est grande, moins les résistances thermiques de contact auront d'effet sur la conductivité du milieu.
- Des valeurs du paramètre  $t$  presque identiques, montrant que les deux types de matériaux (SFG75 et SFG150) appartiennent à la même classe de milieux de percolation. On remarque toutefois que la valeur obtenue  $t \approx 0.4$  est extrêmement basse comparée aux valeurs couramment acceptées pour les exposants universels  $s$  et  $t$  dans le cadre de la TP élargie : 0.86 et 2 respectivement (cf. [66]). Dans des études de perméabilité magnétique d'une dispersion de grains de WC dans du Co une valeur de  $t = 0.436$ , similaire à la notre, a été trouvée [62].
- Des différences significatives dans la valeur du seuil  $\phi_c$ . Il semblerait que l'effet majeur de l'augmentation de la taille des particules de SFG soit un avancement du seuil de transition entre un milieu plutôt isolant à un milieu plutôt conducteur. Ce constat est en accord avec des travaux théoriques qui montrent une diminution significative du seuil de percolation ( $< 0.16$ ) avec l'allongement des particules (cf. [71]).
- Les valeurs du paramètre  $m_l$  (voir section 3.4.2) sont du même ordre de grandeur pour les deux types de matériaux, ce qui fait penser à des morphologies semblables des phases

« isolantes » (sel). Par contre, la valeur de  $m_h$  est bien plus importante pour les composites à SFG150 que pour les matériaux à SFG75. Ceci indique une forme plus allongée des particules dispersées dans le premier cas, ce qui est d'ailleurs vrai.

La qualité des modèles ajustés peut être appréciée sur les figures 3.20 (SFG75) et 3.21 (SFG150). Les mesures  $\gamma$  sont représentées par des croix et les prédictions des modèles (3.19) ajustés par des lignes en continu. On constate un très bon accord entre mesures et modèle. On notera cependant que seulement 6 points de mesure étaient disponibles pour l'analyse des matériaux avec du SFG150.

Enfin, la figure 3.22 permet de comparer le modèle de McLachlan ajusté pour les composites SFG75 avec les lois de puissance données par les équations (3.20). On constate qu'en dehors de la région de transition, la conductivité thermique apparente de nos matériaux peut être modélisée par des lois de puissance de type percolation.

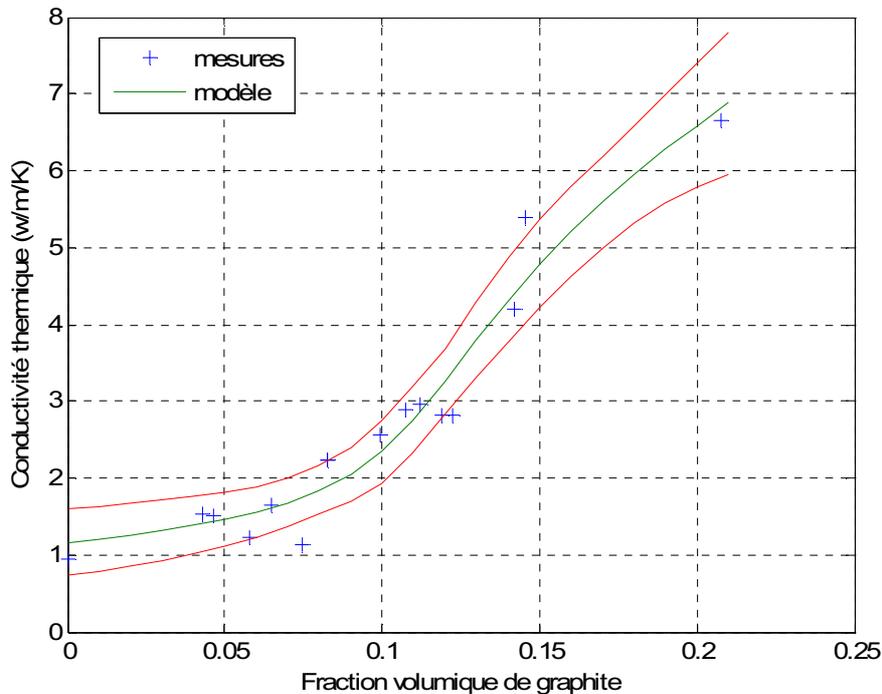


Figure 3.20 : Composites avec de particules de SFG de 75  $\mu\text{m}$  de taille moyenne. Valeurs de conductivité thermique effective mesurées et valeurs prédites par la TMEG (modèle). Intervalle de certitude à 95 % (rouge).

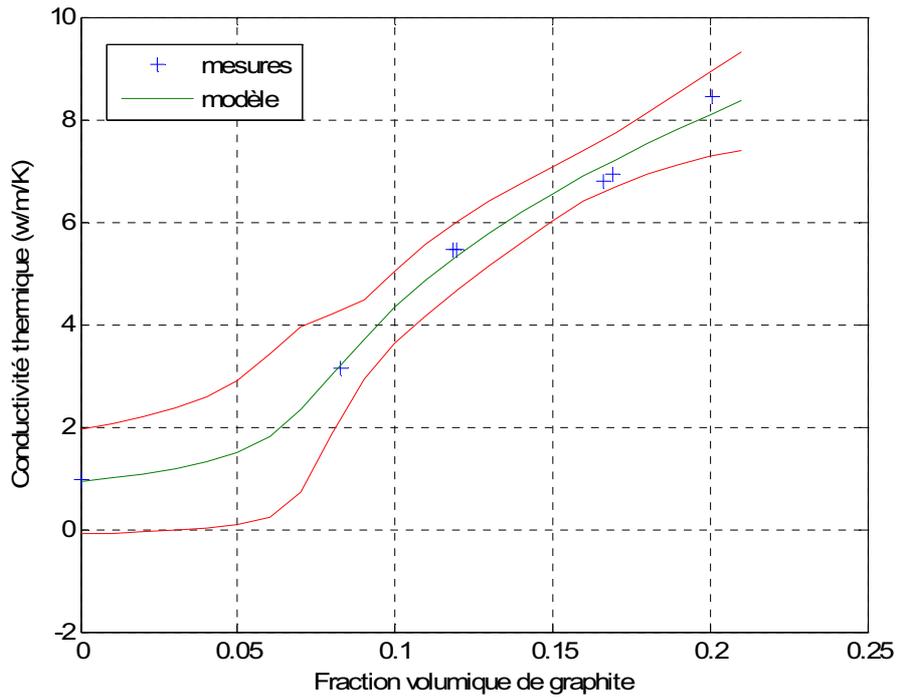


Figure 3.21 : Composites avec de particules de SFG de 150  $\mu\text{m}$  de taille moyenne. Valeurs de conductivité thermique effective mesurées et valeurs prédites par la TMEG (modèle) Intervalle de certitude à 95% (rouge).

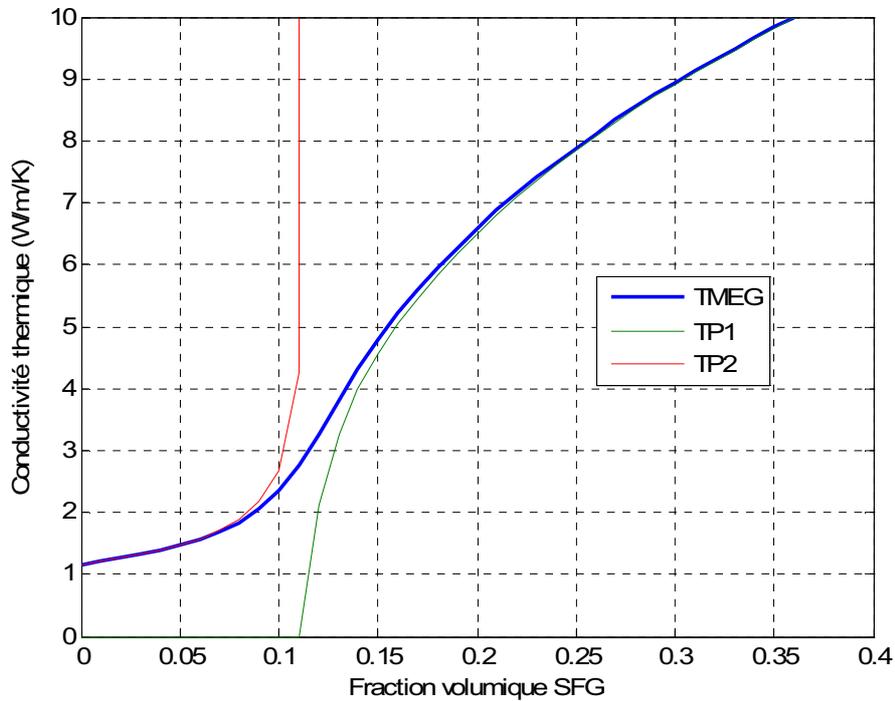


Figure 3.22 : Comparaisons du modèle de McLachlan pour les matériaux SFG75 (ligne en bleu) avec les lois de puissance données par les équations (3.20), notées TP1 et TP2 respectivement dans la figure.

### 3.5. Conclusion

Les propriétés thermiques des composites  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  – SFG élaborés selon les deux protocoles de dispersion ont été étudiées dans ce chapitre. Dans un premier temps, on a constaté l'homogénéité de ces composites. Nous avons ensuite étudié la qualité des échantillons élaborés au travers de leur porosité. Il s'est avéré que cette porosité, augmentait lorsque la teneur en graphite des matériaux augmentait et, diminuait lorsque la taille des particules de SFG augmentait. On a également remarqué que le protocole #2 d'élaboration menait à des échantillons de meilleure qualité (réduction de la porosité, porosité plus finement répartie).

Les études des propriétés thermiques menées ensuite ont mis en exergue l'impact du SFG sur la conductivité et l'effusivité des composites. A savoir, une légère augmentation de la conductivité des composites jusqu'à une fraction volumique de 0.1 et une augmentation plus significative pour des fractions volumiques de SFG plus élevées (on estime à  $8.43 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  la conductivité du SFG150 / 25% #2 ayant une fraction volumique de SFG égale à 0.2). Les mêmes tendances ont été observées pour l'effusivité thermique. Concernant la capacité calorifique et la chaleur massique, on a constaté une baisse progressive de ces propriétés en fonction de la fraction volumique de SFG ainsi qu'une bonne concordance entre les valeurs mesurées et calculées.

Enfin la modélisation de l'évolution de la conductivité thermique des composites  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  – SFG en fonction de la fraction volumique du graphite SFG a montré une très bonne corrélation avec la Théorie du Milieu Effectif Généralisé (TMEG) proposée par McLachlan. Cette adéquation a été constatée aussi bien pour les composites élaborés à partir, du SFG 75 que, du SFG 150. De plus les valeurs des paramètres identifiés du modèle rendent bien compte de la réalité et permettent de mieux comprendre l'effet de la taille et de la forme des particules de SFG sur la conductivité thermique des composites. Une augmentation de la taille des particules de graphite contribuerait par exemple à un avancement de la zone de transition délimitant un milieu isolant d'un milieu conducteur. Il a également été établi que, hors de cette zone de transition, l'évolution de la conductivité thermique des composites  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  – SFG élaborés pouvait être décrite par la théorie de la percolation.

## **Chapitre 4: Propriétés thermiques des composites élaborés par compression**

*Ce chapitre est dédié à l'étude des propriétés thermiques des matériaux  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  – GNE élaborés par compression uniaxiale. Nous présentons dans la première section l'ensemble des matériaux qui ont fait l'objet d'analyse en les décrivant au travers de quelques propriétés texturales (fractions volumiques des phases, densités apparentes, porosité). La deuxième section examine la qualité des mesures des propriétés thermiques réalisées et évalue la qualité des échantillons testés en termes de reproductibilité et d'orthotropie.*

*La troisième partie de ce chapitre regroupe l'ensemble des mesures effectuées : conductivités et effusivités thermiques axiales et radiales, capacités thermiques et chaleurs massiques des échantillons. Les résultats de mesure sont ensuite analysés en faisant ressortir l'effet du GNE sur les propriétés thermiques effectives des matériaux graphite/sel. L'influence de la température sur les propriétés thermiques des composites est également montrée.*

*Enfin, à l'issue de cette campagne de caractérisation, la modélisation de la conductivité thermique effective des composites élaborés par compression est abordée.*

## 4.1. Présentation des matériaux étudiés et de leurs caractéristiques texturales

Les matériaux élaborés par compression uniaxial sont désignés comme suit :

GNE<sub>xx/yy</sub>

où xx représente le pourcentage massique (valeur approximative) de GNE contenu dans la composite et yy le numéro de l'échantillon considéré. On décrit dans le tableau 4.1 ces échantillons en donnant leur densité apparente ( $\rho$ ), la densité apparente de la matrice de GNE ( $\rho_{ag}$ ), la densité apparente de la « paroi » de GNE ( $\rho_{pag}$ ), la fraction volumique de GNE ( $\phi$ ) et la porosité totale ( $\varepsilon$ ). Les grandeurs  $\rho$ ,  $\rho_{ag}$ ,  $\phi$  et  $\varepsilon$  ont été définies dans le chapitre précédent (équations (3.1) à (3.4)). La densité de la « paroi » de la matrice est :  $\rho_{pag} = m_g / V_g$ , où  $m_g$  et  $V_g$  représentent respectivement la masse et le volume de GNE dans l'échantillon.

Les densités apparentes ( $\rho$ ) ont été estimées par mesure du volume ( $V$ ) et de la masse ( $m$ ) des échantillons à l'aide d'un pycnomètre à mercure et d'une balance de précision. Comme les échantillons testés ont souvent été redécoupés avant d'être caractérisés, on fait l'hypothèse que la teneur en masse de GNE ( $w$ ) est la même avant et après découpe. Ainsi, les masses de sel et de graphite de l'échantillon sont estimées par :  $m_g = w m$  et  $m_s = (1-w)m$ . On peut alors calculer  $\rho_{ag}$ ,  $\rho_{pag}$ ,  $\phi$  et  $\varepsilon$ . Comme dans le chapitre 3, on considère  $\rho_s = 2190 \text{kg.m}^{-3}$  et  $\rho_g = 2260 \text{kg.m}^{-3}$ .

Les échantillons élaborés par compression se subdivisent en deux séries : la série A correspondant à des échantillons de petite taille (25x25x25 mm après compression à 15 MPa) et la série B à des échantillons plus volumineux (50x50x50 ou 25 mm après compression à 40 MPa).

	Désignation	GNE (%m)	$\rho$ (kg.m <sup>-3</sup> )	$\rho_{ag}$ (kg.m <sup>-3</sup> )	$\rho_{pag}$ (kg.m <sup>-3</sup> )	$\phi$	$\varepsilon$
Série A	GNE0	0	2137.9	0	0	0	0.0237
	GNE5/1	4.75	1676.7	79.6	294.1	0.0352	0.2355
	GNE5/2	4.75	1691.5	80.3	303.9	0.0355	0.2287
	GNE5/5	5.93	1662.8	98.5	344.6	0.0436	0.2423
	GNE5/6	7.11	1702	121	435.1	0.0535	0.2245
	GNE5/7	7.11	1685.4	119.8	420.2	0.053	0.2321
	GNE10/1	8.29	1773.8	147	571.7	0.065	0.1921
	GNE10/2	8.29	1583.7	131.3	389.8	0.0581	0.2787
	GNE10/3	9.46	1700.9	160.9	542.1	0.0711	0.2255
GNE10/4	9.46	1705.6	161.3	547.1	0.0713	0.2234	
Série B	GNE5/3	5	1790.4	89.5	400.8	0.0396	0.1837
	GNE5/4	5	1826.4	91.2	438	0.0403	0.1679
	GNE10/5	10	1761.3	176.1	637.7	0.0779	0.1982
	GNE10/6	10	1664.5	166.4	526.7	0.0736	0.2423
	GNE10/7	10	1775.6	177.6	656.8	0.0785	0.1917
	GNE15/1	15	1818.2	272.7	926.7	0.1206	0.1736
	GNE15/2	15	1763.8	264.6	838.8	0.117	0.1983
	GNE15/3	15	1759.3	263.9	832	0.1167	0.2004
	GNE20/1	20	1617.3	323.5	790.5	0.1431	0.266
	GNE20/2	20	1763.3	352.7	991	0.156	0.1998
	GNE20/3	20	1705.9	341.2	905.3	0.1509	0.2258
	GNE25/1	25	1485.2	371.8	757.7	0.1645	0.3261
	GNE25/2	25	1643.9	411	940.4	0.1818	0.2551
	GNE25/3	25	1798.2	450.1	1174.1	0.1991	0.1842
	GNE25/4	25	1643.9	411	940.5	0.1818	0.2551
	GNE30/1	30	1638.1	491.4	1031.5	0.2174	0.2589
	GNE30/2	30	1743.2	522.9	1181	0.2314	0.2114
	GNE30/3	30	1562.1	468.6	935.9	0.2073	0.2933
	GNE40/1	40	1609.2	643.7	1151.3	0.2848	0.2742

Tableau 4.1 : Propriétés texturales des matériaux/échantillons étudiés.

La figure 4.1 décrit l'évolution des fractions volumiques de GNE ( $\phi$ ), de sel ( $\phi_s$ ) et de la porosité ( $\varepsilon$ ) en fonction de la densité apparente de la matrice de GNE ( $\rho_{ag}$ ). On constate que la porosité totale des échantillons se situe entre 20 et 30 % comme souhaité (voir chapitre 2, section 2.3).

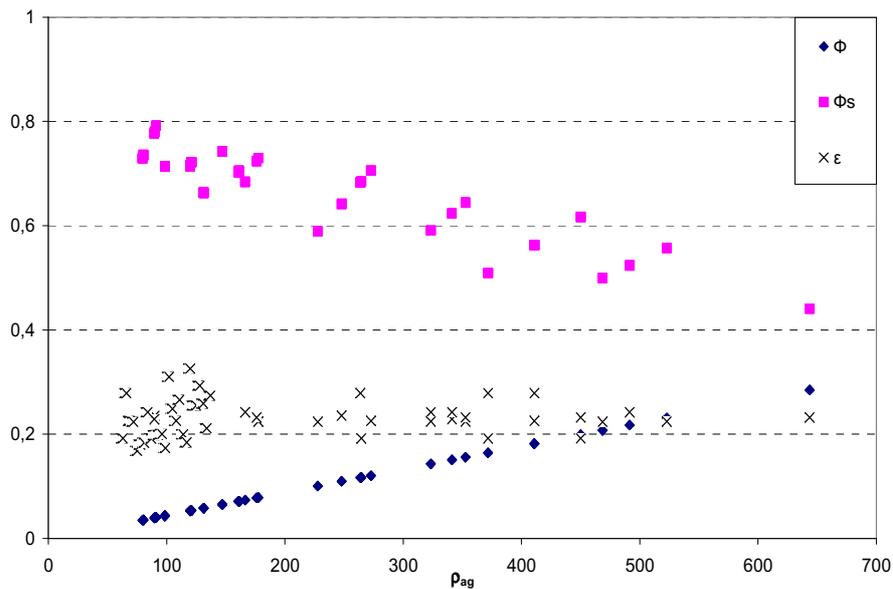


Figure 4.1 : Evolution de  $\phi$ ,  $\phi_s$  et  $\varepsilon$  en fonction de  $\rho_{ag}$  des échantillons étudiés.

## 4.2. Qualité des échantillons et des estimations des propriétés thermiques.

Il s'agit dans cette section d'examiner la qualité des échantillons élaborés par compression uniaxiale (reproductibilité, orthotropie) et la fiabilité des mesures de conductivité et d'effusivité thermique effectuées.

### 4.2.1. Qualité des mesures des propriétés thermiques

La méthode de mesure utilisée pour déterminer les propriétés thermiques des composites a été brièvement introduite au chapitre 2 et se trouve bien détaillée en annexe B de ce document. L'étude de la qualité des mesures des propriétés thermiques des échantillons élaborés par dispersion est alors reconduite avec les données relatives aux échantillons élaborés par compression (3 mesures /échantillons). On représente sur la figure 4.2 (resp. figure 4.3), à gauche, les écarts à la moyenne de l'ensemble des valeurs de conductivité thermique (resp. effusivité) estimées et, à droite, les fréquences des écarts relatifs.

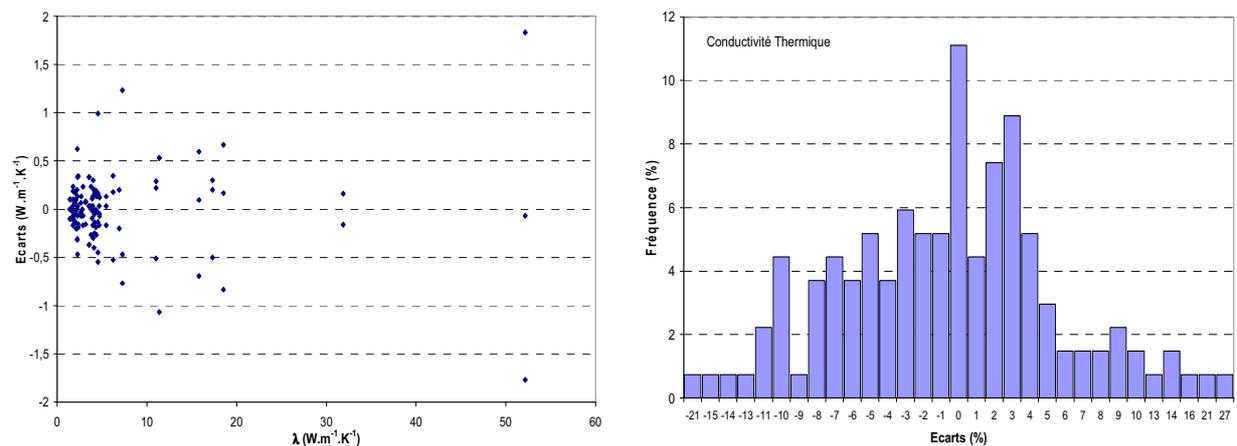


Figure 4.2 : Ecart à la moyenne des conductivités thermiques estimées (gauche) et distribution de fréquences des écarts relatifs entre les conductivités estimées et leurs moyennes (droite).

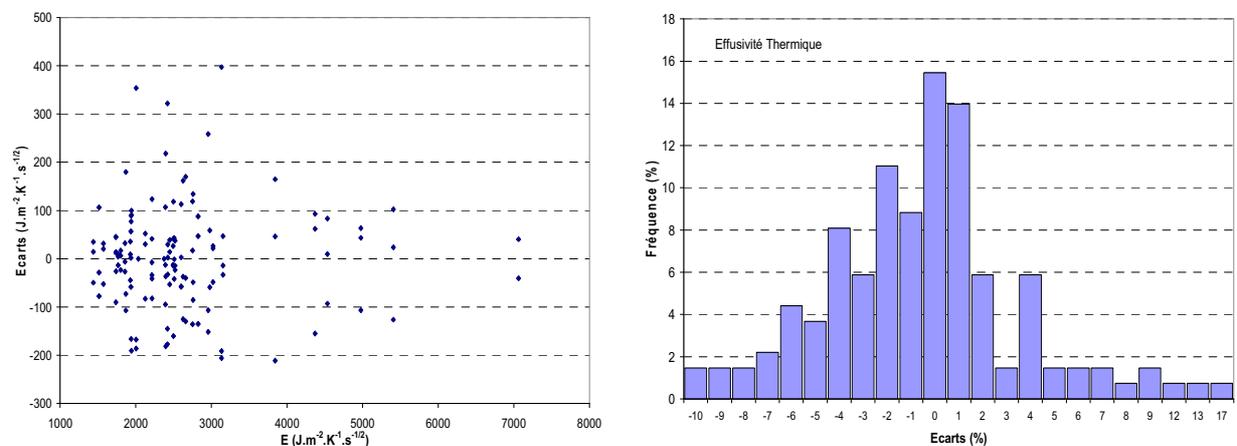


Figure 4.3 : Ecart à la moyenne des effusivités thermiques estimées (gauche) et distribution de fréquences des écarts relatifs entre les effusivités estimées et leurs moyennes (droite).

On remarque sur la figure 4.2 (gauche) que les écarts à la moyenne des conductivités thermiques estimées sont faibles si l'on tient compte notamment de la plage de conductivité balayée. Des résultats analogues sont observés pour l'estimation des effusivités thermiques (figure 4.3, gauche). On constate également que la variabilité dans la mesure de conductivité thermique est de l'ordre de 10 %. La dispersion des mesures d'effusivité se situe quant à elle autour des 5-8 %. Il existe toutefois quelques mesures (effusivité ou conductivité) pour lesquelles les écarts à la moyenne sont plus importants (~20 %). Les échantillons incriminés seront alors ultérieurement exclus pour les études de modélisation.

Les équations (3.8) et (3.9) du chapitre 3, donnant les écarts types  $\sigma_X$  et les moyennes des écarts relatifs  $\mu_X$  entre simulations et mesures de l'évolution thermique en face avant et en face arrière des échantillons, sont à nouveau utilisées pour rendre compte de la qualité des estimations réalisées. Sur la figure 4.4, on retrouve pour l'ensemble des échantillons, les courbes de fréquences cumulées des écarts types (gauche) et des écarts relatifs (droite) entre modèle et expérience.

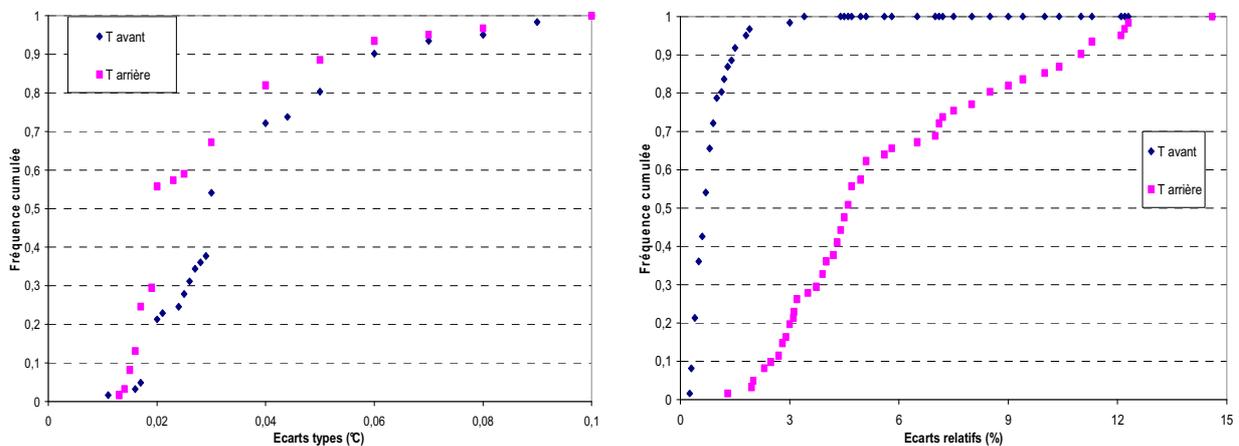


Figure 4.4 : Courbes des fréquences cumulées des écarts types (gauche) et des moyennes des écarts relatifs (droite) observés entre les températures en face avant et arrière mesurés et celles simulées après inversion du modèle de transfert.

On constate que les écarts types en face avant et arrière sont à 100 % inférieurs à 0,1 °C. Les écarts relatifs sont quant à eux toujours inférieurs à 2 % en face avant et inférieurs à 12 % en face arrière dans 99 % des cas. Les écarts relatifs en face arrière paraissent beaucoup plus élevés qu'en face avant, mais il ne faut pas oublier que la température enregistrée en face arrière de l'échantillon est toujours beaucoup plus faible qu'en face avant. Ces résultats traduisent la bonne qualité de l'ajustement du modèle sur les évolutions thermiques en face avant et arrière et viennent renforcer la crédibilité de l'estimation des propriétés thermiques qui en découle.

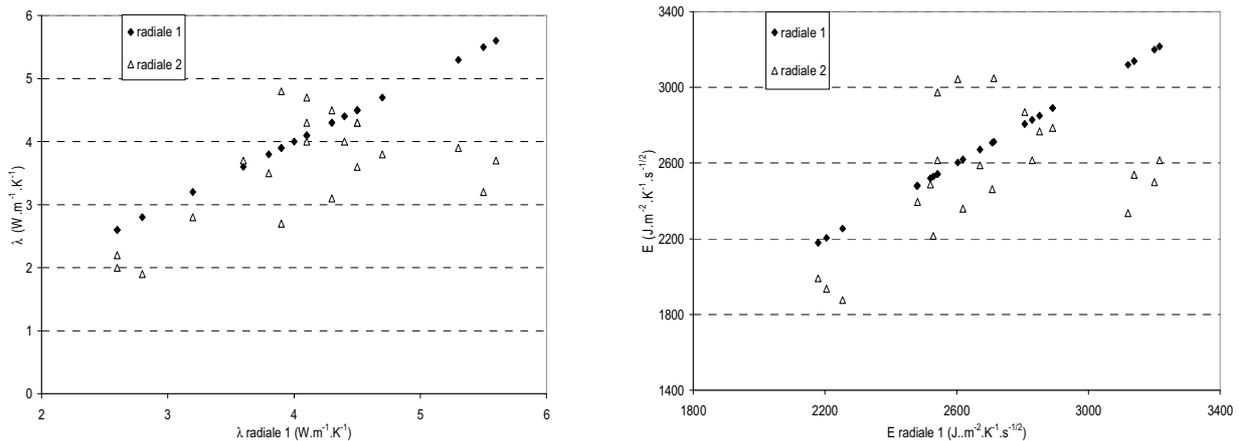
#### 4.2.2. Qualité des échantillons

Nous avons vu au chapitre 2 que la structure de couches parallèles caractéristique des composites GNE/sel pouvait se modifier près des bords de l'échantillon et dégrader ainsi l'orthotropie. De plus, dans le même chapitre, nous avons évoqué les problèmes de reproductibilité qui pouvaient résulter d'un mélange non homogène de particules de GNE et de sel. Dans cette section, nous

analysons la qualité des échantillons élaborés en vérifiant leur orthotropie et en évaluant leur degré de reproductibilité.

### Orthotropie

Les échantillons de la série A (voir tableau 4.1) ont été caractérisés selon deux directions radiales orthogonales (radiale 1 et radiale 2) définissant un plan perpendiculaire à l'axe de compression. On présente sur la figure 4.5 les propriétés (effusivité et conductivité thermique) estimées dans la direction radiale 2 en fonction de celles estimées dans la direction radiale 1.



*Figure 4.5 : Evolution des propriétés thermiques selon les deux directions radiales.*

On constate que pour la plupart des échantillons testés, les écarts entre les propriétés dans les deux directions radiales sont de l'ordre de 14% pour la conductivité thermique et de 8% pour l'effusivité thermique. Ces résultats sont évocateurs d'un comportement quasiment orthotrope des échantillons GNE/sel élaborés. Par ailleurs, on pouvait soupçonner le sel de venir altérer la qualité de la structure en couches parallèles caractérisant les matrices de GNE et de provoquer ainsi une perte de qualité dans l'orthotropie. Cela ne semble pas être le cas.

### Reproductibilité

On dira que la mise en forme est reproductible quand deux échantillons supposés identiques ont les mêmes propriétés texturales et thermiques. Les différences texturales, si elles existent, seront essentiellement dues à des différences de composition occasionnées par un mélange GNE/sel initial pas tout à fait identique ou par une distribution différente d'un même mélange dans un composite qui est par la suite découpé. Quant aux différences dans les propriétés thermiques, elles peuvent traduire aussi bien une différence de composition qu'une différence dans la structure de couches parallèles qui résulte de la compression.

Dans le tableau 4.2, nous avons reporté, pour des couples d'échantillons voulus identiques, les différences (%) observées entre leurs propriétés texturales et leurs conductivités thermiques. La figure 4.6 (à gauche) représente les différences dans les paramètres  $\rho$ ,  $\rho_{ag}$ ,  $\rho_{pag}$ ,  $\phi$  et  $\varepsilon$  face à la teneur massique de GNE. Pour  $\rho$ ,  $\rho_{ag}$  et  $\phi$ , les différences se situent en général sous la barre de

10%, tandis que l'on observe des différences bien plus importantes pour  $\rho_{pag}$  et  $\varepsilon$ . Comme déjà indiqué, ces différences traduisent des compositions différentes dans des échantillons supposés identiques. Ne montrant pas de corrélation significative avec la teneur massique de GNE, il est difficile de savoir si les différences de composition sont la conséquence d'un mélange GNE/sel initial différent ou de la distribution inégale du mélange dans les composites.

GNE	$\rho$	$\rho_{ag}$	$\rho_{pag}$	$\phi$	$\varepsilon$	$\lambda$ (%)	
						Axiale	Radiale
(%m)	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)		
4,75	0,88	0,88	3,33	0,85	2,89	20,45	7,69
7,11	0,98	0,99	3,42	0,93	3,39	18,18	14,22
8,29	10,72	10,68	31,82	10,62	45,08	40,00	25,23
9,46	0,28	0,25	0,92	0,28	0,93	16,37	12,58
10	6,67	6,73	24,70	6,66	20,88		383,40
15	0,26	0,26	0,81	0,26	1,06		68,30
20	9,03	9,03	25,36	9,01	24,89	23,49	
25	10,69	10,54	24,11	10,52	21,77	3,81	
25	8,58	8,69	19,90	8,69	38,49		84,28
30	6,42	6,41	14,49	6,44	18,35	2,79	

Tableau 4.2 : Différences texturales et de conductivité thermique entre échantillons supposés identiques.

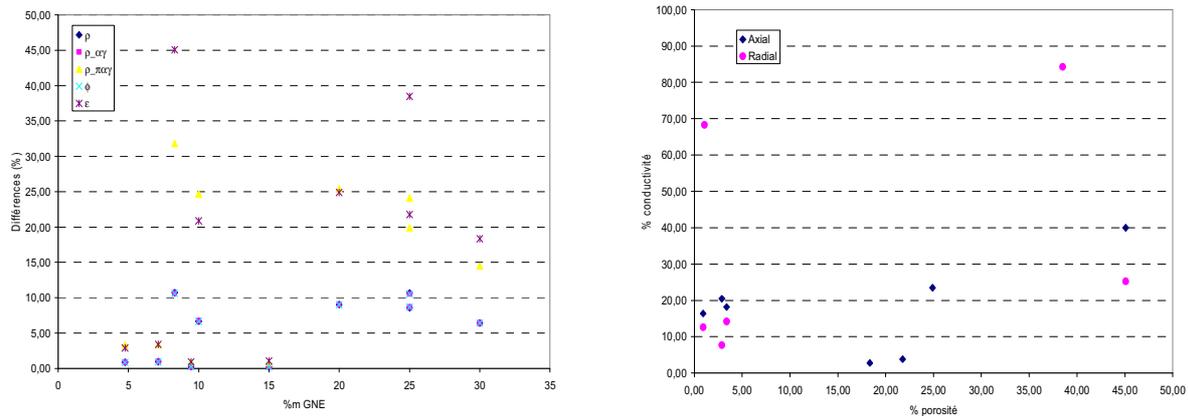


Figure 4.6 : Différences en termes de propriétés texturales (à gauche) et de conductivité thermique (à droite) entre échantillons voulus identiques.

Les différences de conductivité thermique observées sont représentées face aux différences de porosité dans la figure 4.6 (à droite). Elles sont significatives et montrent (en excluant les points à plus de 60% d'écart) une légère tendance à s'accroître avec les différences de porosité. Elles proviennent donc en partie d'une différence dans la composition des échantillons. Cependant, les écarts les plus importants (plus de 40%) dévoilent l'existence des différences structurales significatives. Comme montré sur la figure 4.7 (à gauche), elles concernent la qualité de la structure en couches parallèles des composites et se répercutent, par conséquent, essentiellement dans les valeurs de conductivités radiales. Sur les photos des échantillons GNE10/6 et GNE10/7 (figure 4.7), on constate des effets de bord importants dans l'échantillon GNE10/6, avec des distorsions de la structure en couches parallèles, qui justifient ensuite des valeurs de conductivité radiale de l'ordre de

$2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  face à  $11 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  environ pour l'échantillon GNE10/7. Pour les travaux de modélisation, les échantillons montrant des aberrations structurales seront écartés (GNE5/4 et GNE10/6).

On conclut quant au besoin d'améliorer la mise en forme des matériaux GNE/sel. Ceci ne pourra pas se faire sans passer par une amélioration du mélange initial et une meilleure compréhension du processus de densification.

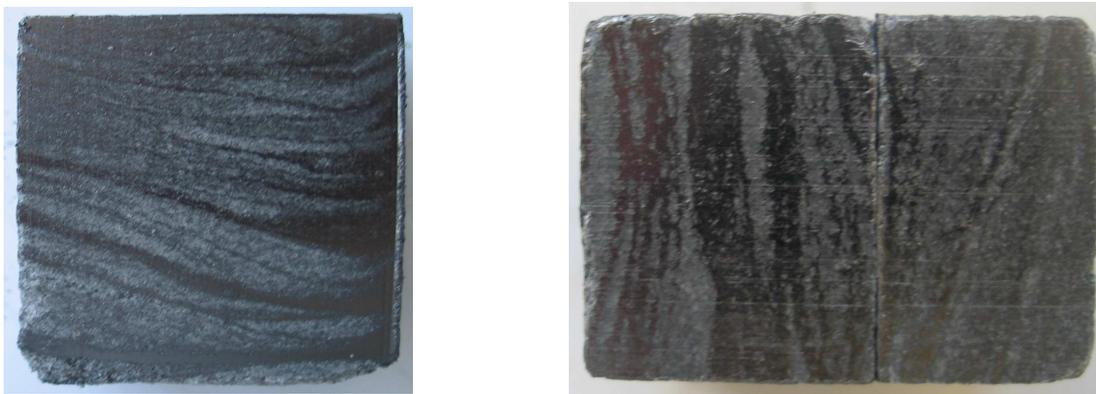


Figure 4.7 : Photos des échantillons GNE10/6 (à gauche) et GNE10/7(à droite).

### **4.3. Propriétés thermiques des composites NaNO<sub>3</sub>/KNO<sub>3</sub> –GNE**

Cette section est consacrée à l'étude de l'effet du GNE sur les propriétés thermiques effectives des matériaux NaNO<sub>3</sub>/KNO<sub>3</sub> –GNE. Le tableau 4.3 présente l'ensemble des conductivités et des effusivités effectives mesurées par la méthode du plan chaud. Les valeurs renseignées sont les moyennes des trois tests effectués sur chacun de ces échantillons. On rappelle également que la dispersion autour de ces valeurs moyennes est inférieure à 10% pour la conductivité et à 8% pour l'effusivité.

	Désignation	GNE (%m)	$\lambda$ (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )			E (J.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup> .s <sup>-1/2</sup> )		
			Axiale	Radiale 1	Radiale 2	Axiale	Radiale 1	Radiale 2
Série A	GNE0	0						
	GNE5/1	4.75	2,2	2,6	-	2034	1765,6	-
	GNE5/2	4.75	1,75	2,8	-	1799	2375	-
	GNE5/5	5.93	1,4	2,66	2,03	1571	2213	1934
	GNE5/6	7.11	2,2	4,15	4,66	1939	2600	3022
	GNE5/7	7.11	1,8	3,56	2,86	1857	2659	2397
	GNE10/1	8.29	1,5	4,36	4,1	1437	2958	2751
	GNE10/2	8.29	2,1	5,46	3,56	1941	3153	2496
	GNE10/3	9.46	2,26	4,53	4	1927	2757	2625
GNE10/4	9.46	2,63	3,96	3,76	2214	2493	2448	
Série B	GNE5/3	5	1,76	-	-	1512,6	-	-
	GNE5/4	5	-	2,24	-	-	2003,3	-
	GNE10/5	10	1,75	-	-	1738	-	-
	GNE10/6	10	-	2,35	-	-	1869	-
	GNE10/7	10	-	11,36	-	-	3844	-
	GNE15/1	15	1,93	-	-	1735,3	-	-
	GNE15/2	15	-	11,01	-	-	4371	-
	GNE15/3	15	-	18,53	-	-	5408,3	-
	GNE20/1	20	3,15	-	-	2125	-	-
	GNE20/2	20	3,89	-	-	2508	-	-
	GNE20/3	20	-	15,8	-	-	4534,2	-
	GNE25/1	25	4,72	-	-	2519,3	-	-
	GNE25/2	25	4,54	-	-	2418	-	-
	GNE25/3	25	-	17,3	-	-	4976	-
	GNE25/4	25	-	31,88	-	-	7064,8	-
	GNE30/1	30	4,3	-	-	2214	-	-
	GNE30/2	30	4,18	-	-	2422,3	-	-
GNE30/3	30	-	52,16	-	-	8186,3	-	
GNE40/1	40	-	110,1	-	-	13 861	-	

Tableau 4.3 : Propriétés thermiques des composites GNE/sel testés

A partir des valeurs des conductivités, des effusivités et des densités apparentes des échantillons, on peut déterminer les capacités thermiques et les chaleurs massiques de chacun d'entre eux à partir de la relation :  $E = \sqrt{\lambda\rho c}$  . Les résultats sont présentés sur le tableau 4.4.

	Désignation	Densité apparente (kg.m <sup>-3</sup> )	Capacité thermique $\rho c_p$ (KJ.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> )			Chaleur massique $c_p$ (J.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )		
			Axiale	Radiale 1	Radiale 2	Axiale	Radiale 1	Radiale 2
Série A	GNE0	2137,9						
	GNE5/1	1676,7	1880,5	1199,0	-	1121,6	715,1	-
	GNE5/2	1691,5	1849,5	2014,5	-	1093,3	1191,0	-
	GNE5/5	1662,8	1762,9	1841,1	1842,5	1060,2	1107,2	1108,1
	GNE5/6	1702	1709	1628,9	1959,8	1004,1	957,1	1151,4
	GNE5/7	1685,4	1915,8	1986,0	2009,0	1136,7	1178,4	1192,0
	GNE10/1	1773,8	1376,6	2006,8	1845,9	776,1	1131,4	1040,6
	GNE10/2	1583,7	1794	1820,8	1750,0	1132,8	1149,7	1105,0
	GNE10/3	1700,9	1643,1	1677,9	1722,7	966,0	986,5	1012,8
GNE10/4	1705,6	1863,8	1569,5	1593,8	1092,8	920,2	934,5	
Série B	GNE5/3	1790,4	1300	-	-	726,1	-	-
	GNE5/4	1826,4	-	1791,6	-	-	981,0	-
	GNE10/5	1761,3	1726,1	-	-	980,0	-	-
	GNE10/6	1664,5	-	1486,5	-	-	893,0	-
	GNE10/7	1775,6	-	1300,7	-	-	732,6	-
	GNE15/1	1818,2	1560,2	-	-	858,1	-	-
	GNE15/2	1763,8	-	1735,3	-	-	983,8	-
	GNE15/3	1759,3	-	1578,5	-	-	897,2	-
	GNE20/1	1617,3	1433,5	-	-	886,4	-	-
	GNE20/2	1763,3	1617	-	-	917,0	-	-
	GNE20/3	1705,9	-	1301,2	-	-	762,8	-
	GNE25/1	1485,2	1344,7	-	-	905,4	-	-
	GNE25/2	1643,9	1287,8	-	-	783,4	-	-
	GNE25/3	1798,2	-	1431,2	-	-	795,9	-
	GNE25/4	1643,9	-	1565,6	-	-	952,4	-
	GNE30/1	1638,1	1140	-	-	695,9	-	-
	GNE30/2	1743,2	1403,7	-	-	805,3	-	-
	GNE30/3	1562,1	-	1284,8	-	-	822,5	-
	GNE40/1	1609,2	-	1745	-	-	1084,4	-

Tableau 4.4 : Capacités thermiques et chaleurs massiques des échantillons testés.

### 4.3.1. Choix des paramètres microstructuraux appropriés.

Il s'agit maintenant de décider des paramètres relatifs à la microstructure du composite au regard desquels la description des propriétés macroscopiques ( $\lambda$ ,  $E$ ,  $\rho c_p$ ) des matériaux est la plus pertinente.

La conductivité thermique du graphite étant largement supérieure à celle du sel et de l'air, la densité apparente  $\rho_{ag}$  de la matrice de GNE (voire la fraction volumique  $\phi$  de GNE) apparaît donc comme un paramètre pouvant expliquer (au moins en partie) les mesures de conductivité thermique effectuées sur les composites GNE/sel.

Dans le chapitre 2 (section 2.3), l'effet du sel sur la structure des matrices GNE/sel a été évoqué, en signalant les différences de tortuosité attendues par rapport aux matrices de GNE seul et qui doivent se traduire par des différences en termes de conductivité thermique. Par conséquent, il semblait raisonnable de retenir aussi la fraction volumique du sel ( $\phi_s$ ) comme paramètre explicatif. Cependant, le protocole d'élaboration adopté, fixant la porosité totale des échantillons et établissant un rapport linéaire entre  $\phi$  et  $\phi_s$ , fait que les couples ( $\phi$ ,  $\rho_{ag}$ ) et ( $\phi_s$ ,  $\rho_{pag}$ ) sont interchangeables au regard de l'analyse des mesures des propriétés thermiques des matériaux GNE/sel élaborés. La

figure 4.8 montre la corrélation existant entre respectivement la densité apparente de la matrice de GNE ( $\rho_{ag}$ ) et la densité apparente de la « paroi » de GNE ( $\rho_{pag}$ ) et entre les fractions volumiques  $\phi$  et  $\phi_s$ , pour l'ensemble des échantillons étudiés.

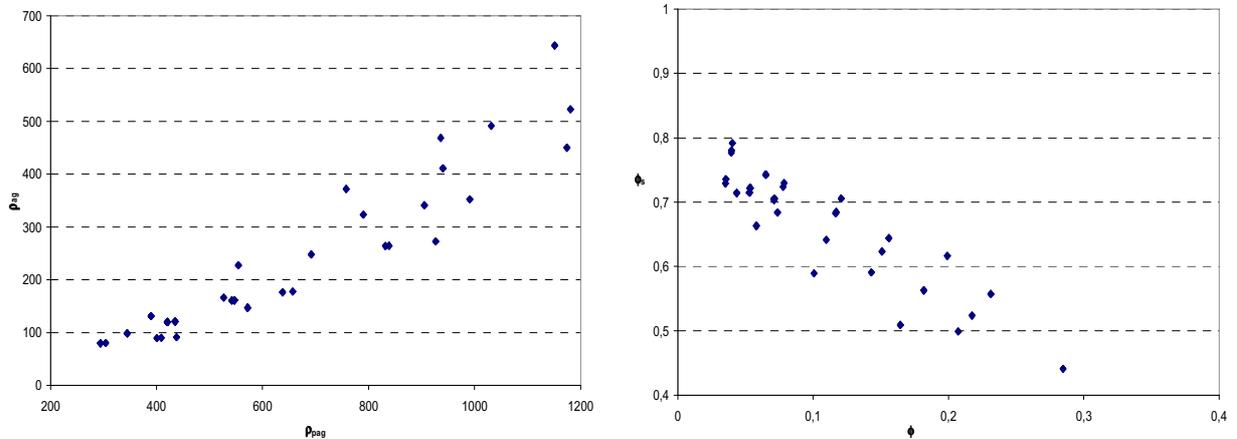


Figure 4.8 : Densité apparente de la matrice de GNE ( $\rho_{ag}$ ) en fonction de la densité de la « paroi » de GNE ( $\rho_{pag}$ ) (gauche) et fraction volumique de GNE ( $\phi$ ) en fonction de la fraction volumique de sel ( $\phi_s$ ) (droite).

### 4.3.2. Propriétés thermiques axiales des composites élaborés par compression uniaxiale.

Nous étudions ici les propriétés thermiques mesurées dans la direction axiale (parallèlement à l'axe de compression) des échantillons. Les figures 4.9 et 4.10 présentent respectivement l'ensemble des valeurs de conductivité ( $\lambda$ ) et d'effusivité ( $E$ ) axiales disponibles en fonction de  $\rho_{ag}$ .

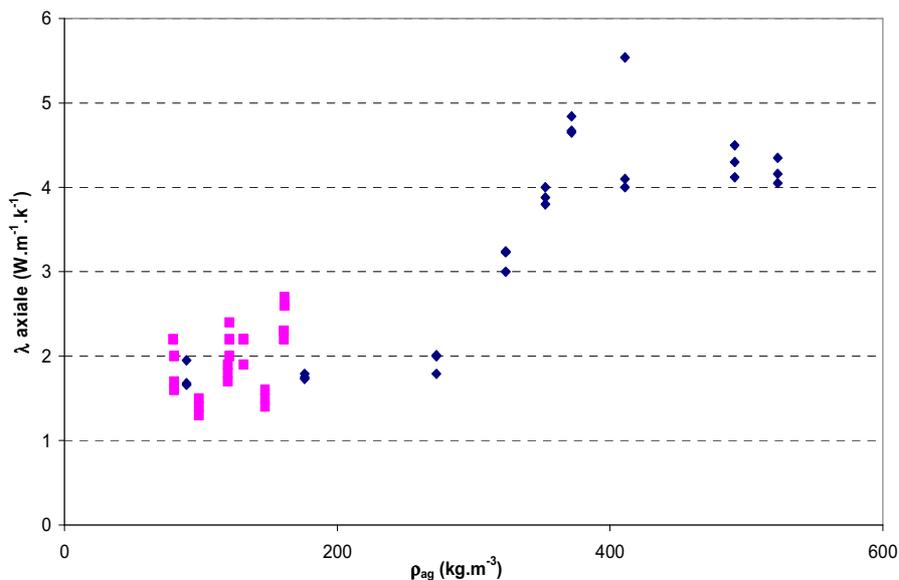


Figure 4.9 : Conductivité thermique axiale des composites  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  – GNE en fonction de la densité apparente de la matrice de GNE ( $\rho_{ag}$ ).

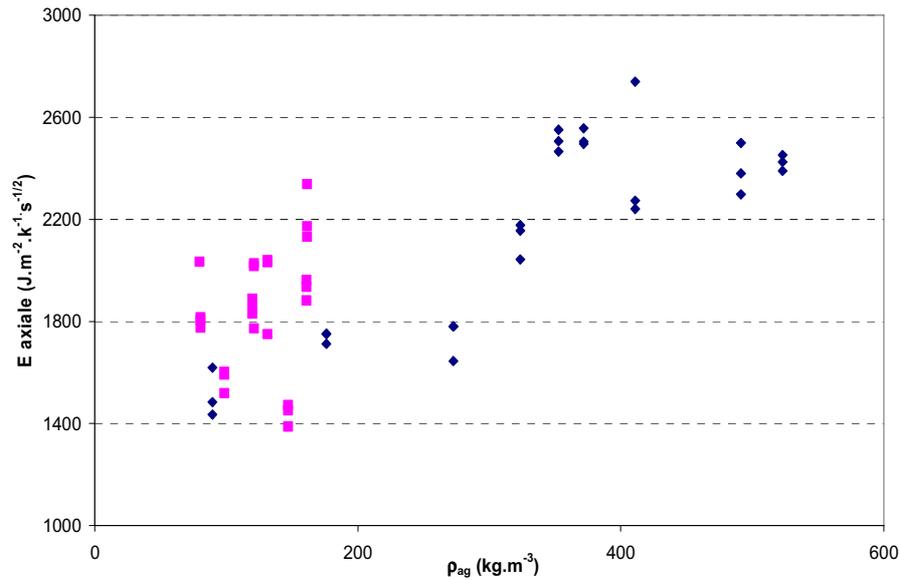
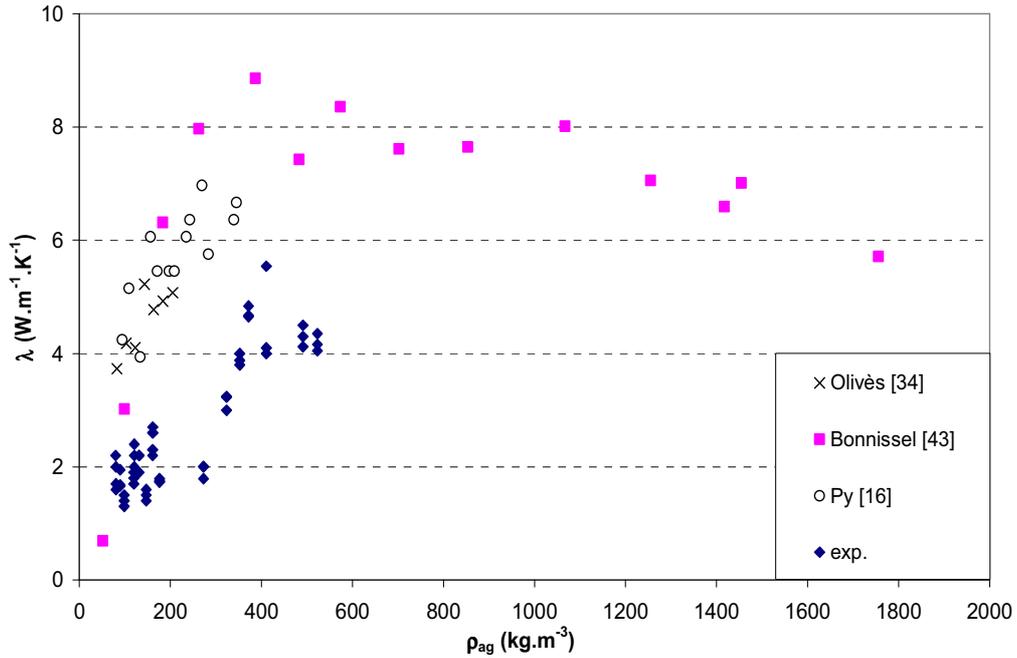


Figure 4.10 : Effusivité thermique axiale des composites  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3 - \text{GNE}$  en fonction de la densité apparente de la matrice de GNE ( $\rho_{ag}$ ).

On constate que jusqu'à une densité apparente de la matrice de GNE de  $200 \text{ kg.m}^{-3}$ , la conductivité thermique axiale des composites évolue très faiblement et reste comprise entre 1 et  $3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Cela concerne principalement les échantillons de la série A.

Pour  $200 \leq \rho_{ag} \leq 600$ , la conductivité axiale (série B) augmente légèrement pour se situer entre 3 et  $5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Ces valeurs sont supérieures à la conductivité du sel seul ( $\sim 0,8 - 1 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) mais restent relativement faibles comparé aux conductivités radiales des mêmes composites (voir section 4.3.3), surtout pour des composites à teneur en GNE élevée. On observe un comportement similaire au sujet de l'évolution de l'effusivité thermique des composites (figure 4.10).

La figure 4.11 permet de comparer les conductivités axiales des matériaux GNE/sel à celles des matrices de GNE seul. On constate tout d'abord que les conductivités des composites GNE/sel (série A et B) sont systématiquement plus faibles que celles des matrices de GNE. Par contre, on observe des tendances d'évolution par rapport à  $\rho_{ag}$  similaires : la conductivité augmente avec  $\rho_{ag}$  jusqu'à une densité de l'ordre de  $400 \text{ kg.m}^{-3}$ ; au delà de cette valeur, elle tend à stagner, voire à baisser légèrement.



La conductivité thermique radiale des échantillons ne cesse d'augmenter avec l'ajout de GNE. On distingue d'abord les échantillons de la série A (carré rose) pour lesquels la conductivité radiale reste comprise entre 2 et 6  $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour  $\rho_{ag}$  allant de 80 à 160  $\text{kg.m}^{-3}$ . Dans cette même gamme de densité, la conductivité axiale des échantillons (figure 4.9) s'échelonnait de 1,3 à 2,7  $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Le degré d'orthotropie, défini par  $\lambda_{radiale} / \lambda_{axiale}$ , varie de 1,5 à 2.2 pour la série A.

Concernant les échantillons de la série B (losange bleu et rond noir), la conductivité radiale est comprise entre 5 et 110  $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour  $90 \leq \rho_{ag} \leq 650 \text{ kg.m}^{-3}$  si l'on écarte les échantillons à structure aberrante GNE5/4 et GNE10/6 (rond noir). Le degré d'orthotropie pour les échantillons de la série B s'étend de 2,5 ( $\rho_{ag} = 80 \text{ kg.m}^{-3}$ ) à 20 ( $\rho_{ag} = 650 \text{ kg.m}^{-3}$ ).

On notera qu'il est possible d'obtenir par compression des composites, dont la conductivité radiale est jusqu'à vingt fois plus élevée que la conductivité axiale, et jusqu'à cent fois plus importante que la conductivité thermique du sel seul.

Des tendances similaires à celles décrites ci-dessus peuvent être observées au sujet de l'effusivité thermique (figure 4.13).

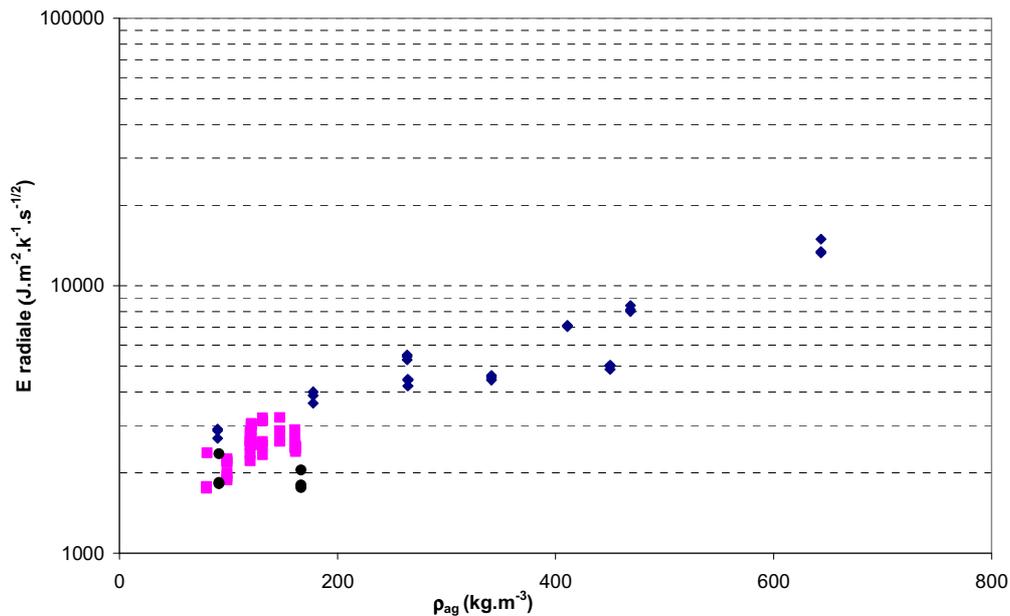


Figure 4.13 : Effusivité thermique radiale en fonction de la densité apparente de la matrice de GNE ( $\rho_{ag}$ ).

Les composites étudiés étant destinés à un usage au voisinage de la température de fusion de l'eutectique  $\text{KNO}_3\text{-NaNO}_3$  (222°C), nous avons testé quelques échantillons de la série A à 200°C. La figure 4.14 représente les valeurs de conductivité thermique radiale obtenues à 200°C face aux valeurs issues des tests à température ambiante. On constate une baisse de l'ordre de 1  $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  en passant à 200°C. Cette diminution de la conductivité s'explique par la diminution de la conductivité thermique du graphite avec la température [72].

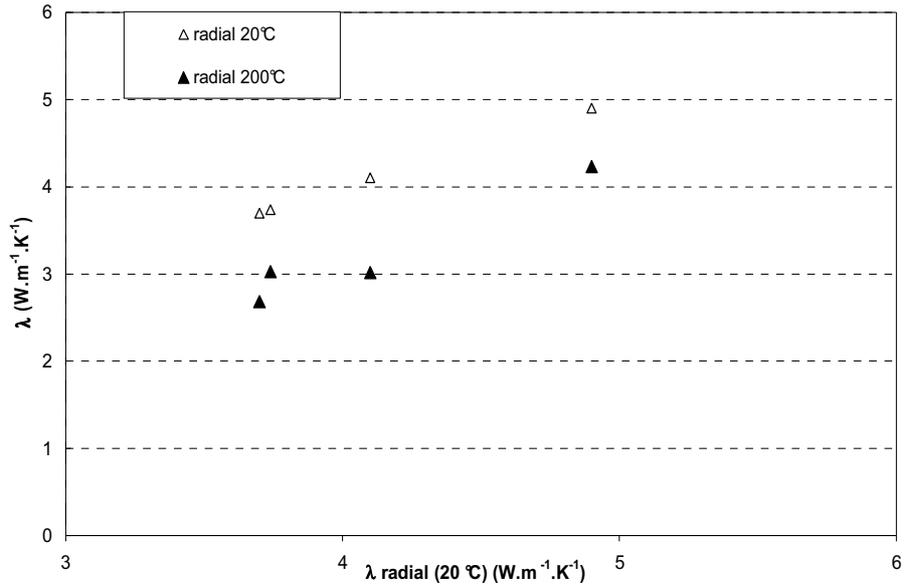


Figure 4.14 : Effet de la température sur la conductivité des composites GNE/sel (Série A)

Enfin, la figure 4.15 confronte la conductivité radiale des composites GNE/sel à celle des matrices de GNE seul. Comme attendu, pour une même valeur de  $\rho_{ag}$ , la conductivité des matériaux GNE/sel est inférieure à celle des matrices de GNE seul. Cette diminution de la valeur de la conductivité radiale est particulièrement marquée sur la plage  $200 \leq \rho_{ag} \leq 500 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ . Nous reviendrons sur ces observations dans la section dédiée à la modélisation.

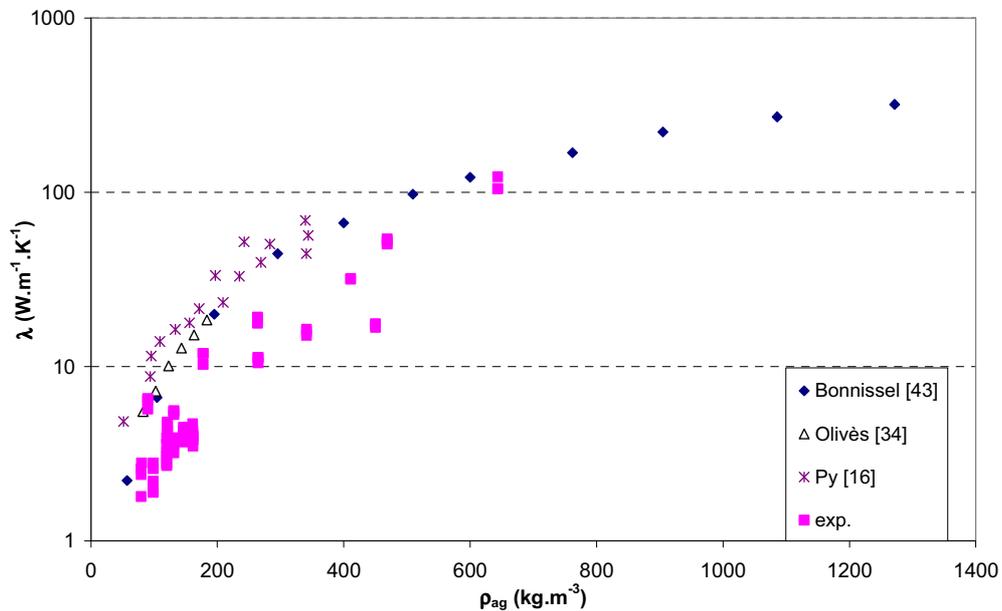


Figure 4.15 : Comparaison des conductivités thermiques radiales.

### 4.3.4. Capacité thermique et chaleur massique des composites élaborés par compression uniaxiale.

Les capacités thermiques volumiques calculées à partir des valeurs mesurées de conductivité et effusivité thermiques sont données sur la figure 4.16.

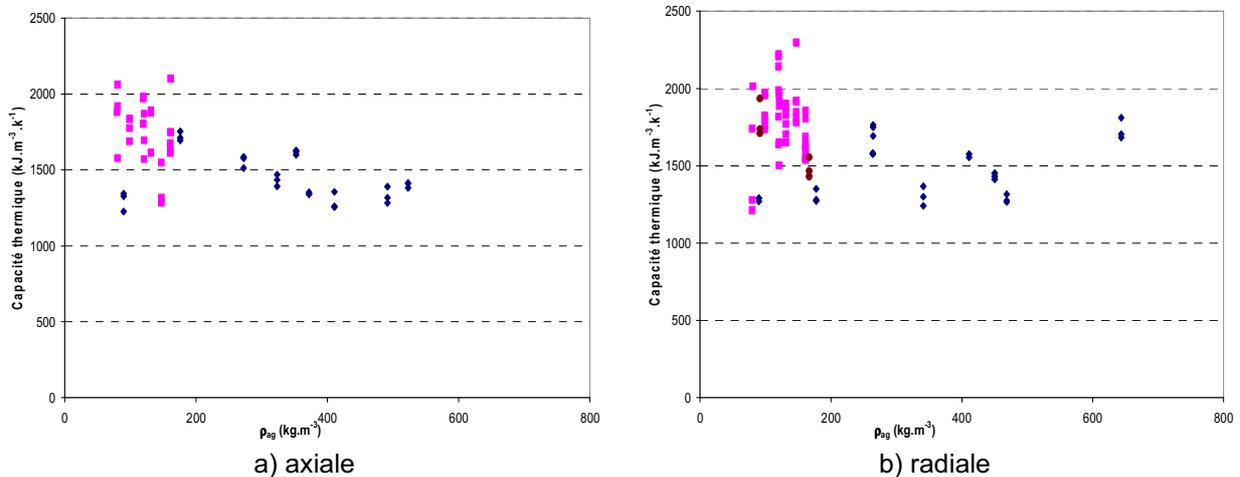


Figure 4.16 : Capacité thermique des composites NaNO<sub>3</sub>/KNO<sub>3</sub> – GNE calculées à partir des propriétés :

On constate tout d'abord une bonne concordance entre les valeurs des chaleurs volumiques calculées à partir des propriétés axiales avec les valeurs obtenues à partir des propriétés radiales. Ce résultat rassure quant à la qualité des mesures effectuées. En effet, la chaleur volumique est une propriété indépendante de la structure du matériau. Sa valeur ne dépend donc pas de la direction dans laquelle les tests sont effectués.

D'autre part, on remarque une légère diminution de la chaleur volumique des composites lorsque la densité apparente de la matrice de GNE augmente. Cette baisse est bien entendu liée à la baisse de la quantité de sel dans le composite lorsque  $\rho_{ag}$  augmente. Des résultats analogues sont observés pour l'évolution de la chaleur massique des composites en fonction de  $\rho_{ag}$  (figure 4.17).

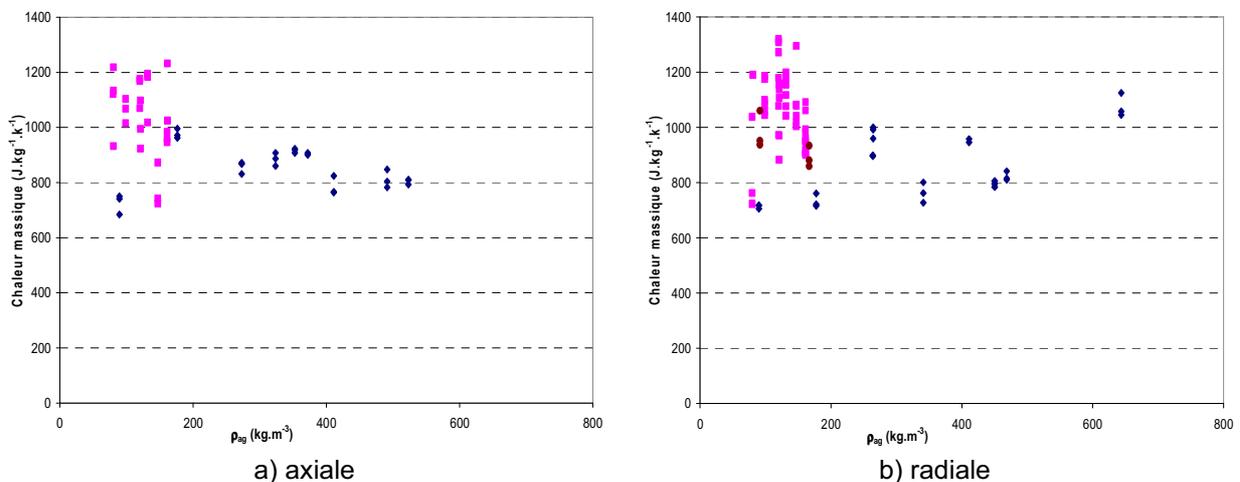


Figure 4.17 : Chaleur massique des composites NaNO<sub>3</sub>/KNO<sub>3</sub> – GNE calculées à partir des propriétés :

### 4.3.5. Bilan des propriétés thermiques des composites élaborés par compression uniaxiale

La figure 4.18 reprend l'ensemble des valeurs de conductivité thermique axiale et radiale (température ambiante, disponibles, en les représentant face à la teneur en GNE des composites.

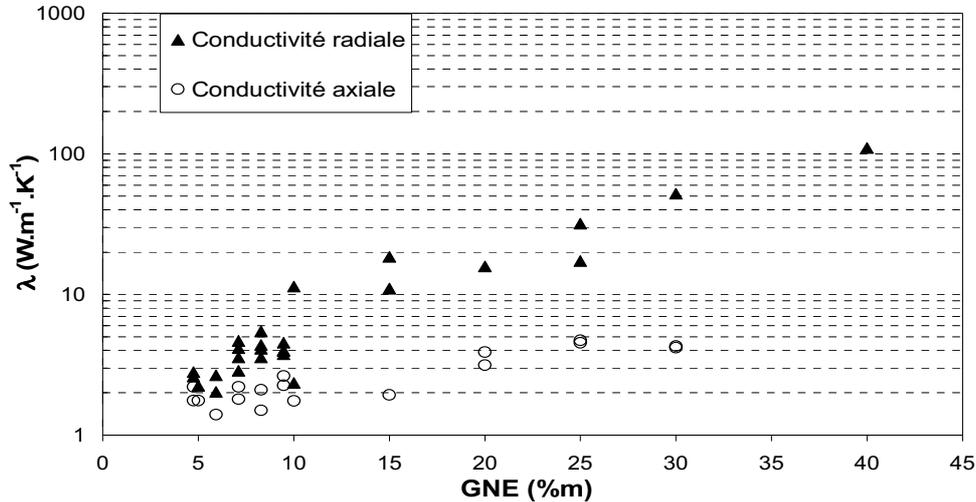


Figure 4.18 : Bilan des conductivités thermiques axiales et radiales des composites  $NaNO_3/KNO_3$  – GNE.

On décèle deux zones de composition en GNE pour lesquelles le comportement de la conductivité thermique diffère. Jusqu'à 10%*m* de GNE environ, les conductivités thermiques axiales et radiales des composites augmentent légèrement et restent dans un même ordre de grandeur. Le caractère anisotrope des composites est alors peu marqué. Au delà de 10%*m*, la conductivité thermique radiale continue d'augmenter progressivement avec le contenu en graphite et se différencie nettement de la conductivité axiale. Celle-ci augmente plus lentement et stagne à 4-5 W/m/K environ pour des pourcentages en masse de GNE supérieurs à 15.

Les tendances décrites s'expliquent par l'évolution de la structure des matériaux GNE/sel avec la teneur massique en GNE. Premièrement au cours de la densification, les vermicules se réarrangent et se déforment dans une direction préférentielle (direction radiale). Ainsi, les feuillets de graphènes, constitutifs des vermicules de GNE, s'alignent le long de la direction radiale sous l'effet de la compression. Cette prédisposition privilégie d'emblée la conductivité radiale par rapport à la conductivité axiale puisque la conductivité thermique le long des feuillets est extrêmement élevée ( $\lambda \sim 2000 W.m^{-1}.K^{-1}$ ). Deuxièmement, le réarrangement pendant la compression donne également lieu à une matrice constituée d'une succession de couches denses de graphite séparées par des couches de mélange graphite/sels. Ainsi, plus la teneur en graphite augmente, plus la taille et le nombre des couches denses en graphite augmentent dans le composite au détriment des couches graphites/sels. Ce phénomène contribue nettement à amplifier les transferts thermiques le long de ces couches et donc la conductivité thermique radiale. A l'inverse, les transferts thermiques dans la direction axiale sont doublement pénalisés du fait de la disposition des feuillets de graphènes le long de l'axe  $\vec{c}$  ( $\lambda \sim 10 W.m^{-1}.K^{-1}$ ) et de la faible conductivité des couches GNE/sels traversées.

Enfin, il est également intéressant de comparer nos matériaux GNE/sel aux matériaux obtenus par compression isostatique dans le projet DISTOR (Chapitre 2, section 2.4). Les données de conductivité thermique de ces matériaux ont été fournies par Pincemin S. [40], doctorante au laboratoire PROMES.

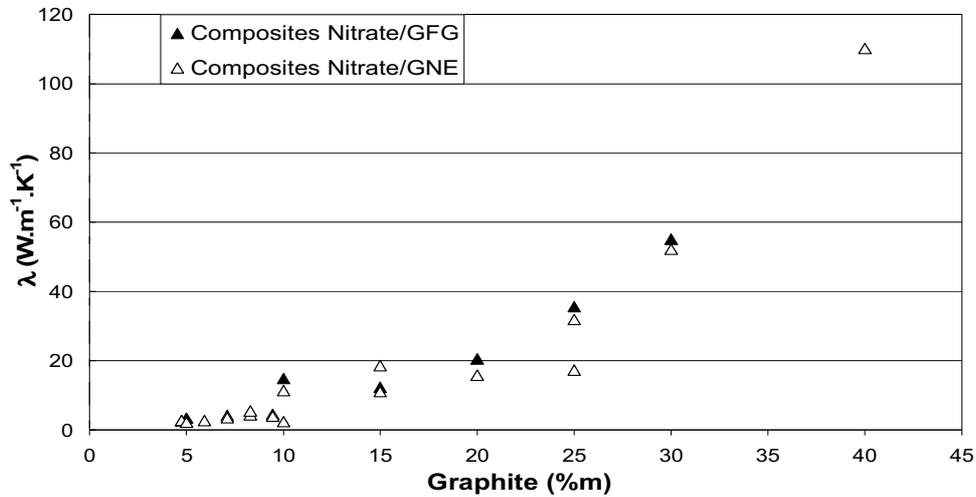


Figure 4.19 : Comparaison des conductivités des composites obtenus par compression uniaxiale et isostatique en fonction de la teneur en graphite.

On peut apprécier sur la figure 4.19 l'évolution de la conductivité des composites  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  – GFG (compression isostatique) et de la conductivité radiale des composites  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  – GNE (compression uniaxiale) en fonction respectivement de la teneur en GFG et en GNE. Nous rappelons que ces deux modes d'élaboration aboutissent à des matériaux présentant des traits structuraux très différents :

- A l'échelle macroscopique, les composites issus de la compression isostatique ressemblent à une phase continue et dense de graphite où sont distribués aléatoirement des particules sphériques de sel, tandis que les matériaux GNE/sel présentent une structure en couches denses de graphite séparées par des couches de mélange graphite/sel (voir fig. 4.20a et 4.20b).
- A l'échelle microscopique, l'orientation des feuillets de graphènes est évidente (et s'explique) pour les matériaux GNE/sel, tandis qu'elle n'apparaît pas clairement pour les matériaux GFG/sel (voir fig. 4.20c et 4.20d).

Compte tenu de ces différences structurales, il est frappant de constater la coïncidence presque parfaite entre les conductivités thermiques, sur la gamme de compositions testées.

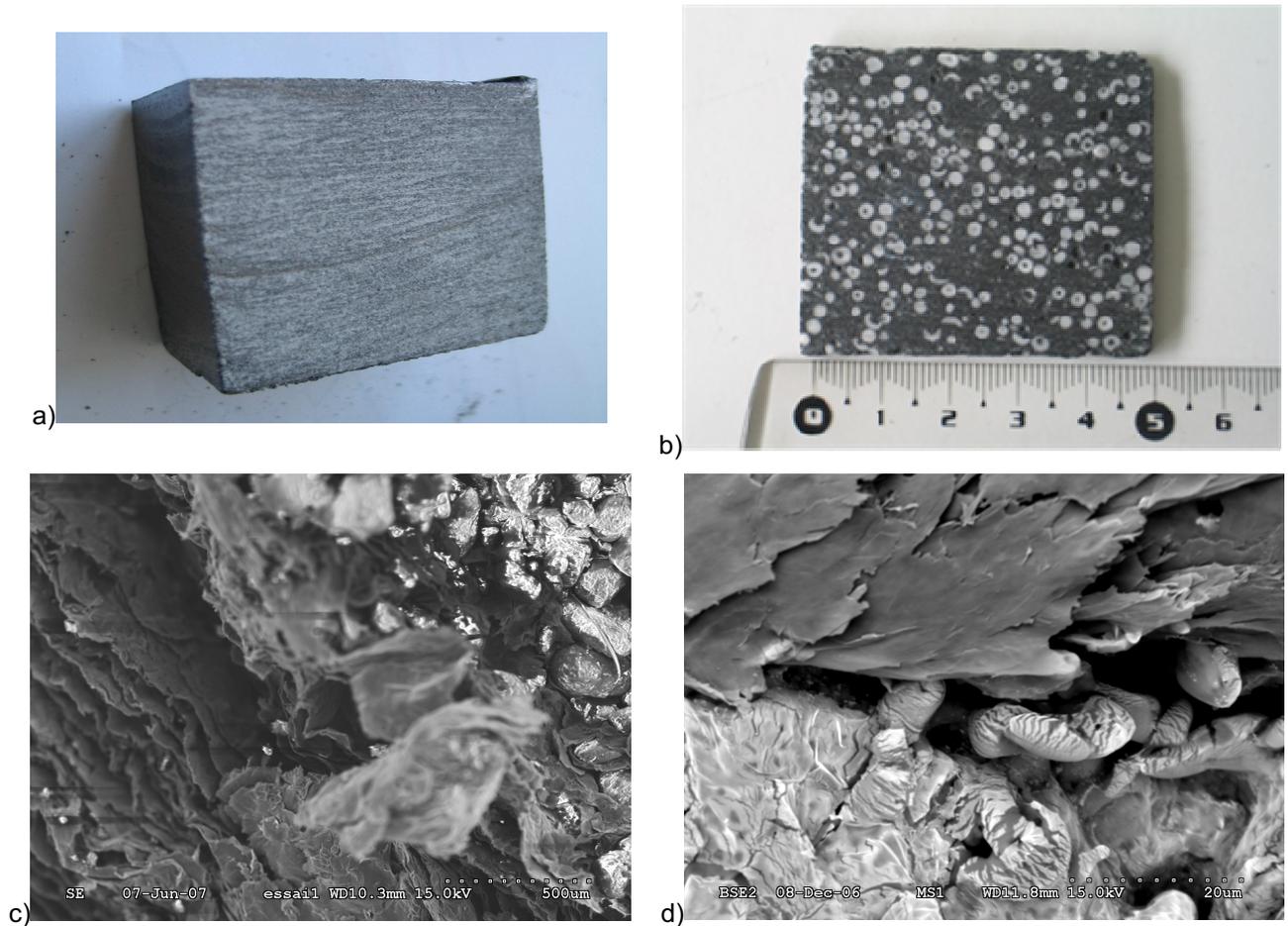


Figure 4.20 : a) Composite GNE/sel (compression uniaxiale) ; b) Composite GFG/sel (compression isostatique) ; c) Photo MEB GNE/sel (structure en couche + grain de sel) ; d) Image MEB GFG/sel en surface (structure désordonnée).

## 4.4. Modélisation des composites

De par la complexité de leur structure, la modélisation des propriétés thermiques effectives des matériaux GNE/sel s'avère extrêmement compliquée. Dans un contexte plus simple que le notre, celui des matrices de GNE seul, il y a eu par le passé quelques tentatives heureuses de modélisation de la conductivité thermique (axiale et radiale) des matrices de GNE en fonction de leur densité apparente. Nous allons les présenter brièvement ici, pour donner ensuite quelques pistes pour la modélisation des matériaux GNE/sel. On s'attardera un peu plus sur le modèle proposé par Olivès et al. [35] car les auteurs proposent une extension pour expliquer la conductivité thermique de matrices de GNE imprégnées avec du sel.

### Modélisation des conductivités thermiques effectives des matrices de GNE

Les travaux de recherche à ce sujet ne sont pas nombreux. A notre connaissance, ils se limitent aux travaux de Bonnissel et al. [44] et à ceux déjà cités de Olivès et al. [35]. Bien que plus simple, la structure de matrices de GNE reste compliquée et inconnue dans le détail. Ainsi, que ce

soit dans les travaux de Bonnisel et al. où dans ceux de Olivès et al., des hypothèses fortes concernant la structure sont adoptées et confortées ensuite par la qualité des résultats obtenus.

Dans l'approche de Bonnisel et al., on suppose une loi particulière de variation du tenseur de conductivité locale en fonction des conductivités des particules de graphite et de la densité apparente locale. De plus, une loi arbitraire de variation de la densité apparente locale au sein de la matrice est proposée. Les conductivités effectives sont alors obtenues en intégrant les conductivités locales sur toute l'épaisseur de l'échantillon.

Olivès et al. proposent une structure simple en losange pour la matrice de GNE et appliquent ensuite une approche de type réseau qui tient compte de la tortuosité des chemins de conduction dans les directions axiale et radiale. La tortuosité dans la direction radiale est supposée de la forme :

$$\tau_{rd}^2 = \tau_o^2 \left( \frac{\phi}{\phi_o} \right)^{-\eta} \quad (4.1)$$

où  $\phi_o$  et  $\tau_o^2$  représentent respectivement la fraction volumique de GNE et la tortuosité d'une matrice de GNE encore isotrope. La structure adoptée (losange), permet d'écrire :

$$\frac{1}{\tau_{ax}^2} + \frac{1}{\tau_{rd}^2} = 1 \quad (4.2)$$

où  $\tau_{ax}^2$  représente la tortuosité dans la direction axiale. De cette expression, on dérive :  $\tau_{ax}^2 = \tau_{rd}^2 = \tau_o^2 \approx 2$  pour le milieu isotrope. La valeur de  $\phi_o$ , ainsi que celle de l'exposant  $\eta$ , seront déterminées à partir des mesures de conductivité.

Par ailleurs, les sections efficaces de conduction dans les directions axiale et radiale sont exprimées par :

$$A_{rd} = A_o \left( \frac{\phi}{\phi_o} \right)^{4/3} \quad \text{et} \quad A_{ax} = A_o \left( \frac{\phi}{\phi_o} \right)^{2/3} \quad (4.3)$$

où  $A_o$  est la section efficace du milieu isotrope.

Les conductivités thermiques effectives de la matrice sont alors données par :

$$\lambda_{rd} = \lambda_o \left( \frac{\phi}{\phi_o} \right)^{4/3+\eta} = \lambda_o \left( \frac{\rho_{ag}}{\rho_{ago}} \right)^{4/3+\eta} \quad (4.4)$$

$$\lambda_{ax} = \lambda_o \left( \frac{\phi}{\phi_o} \right)^{2/3} \left[ \tau_o^2 - \left( \frac{\phi}{\phi_o} \right)^\eta \right] = \lambda_o \left( \frac{\rho_{ag}}{\rho_{ago}} \right)^{2/3} \left[ \tau_o^2 - \left( \frac{\rho_{ag}}{\rho_{ago}} \right)^\eta \right] \quad (4.5)$$

Nous montrons sur la figure 4.21 les résultats de l'application des expressions (4.4) et (4.5) aux données disponibles de conductivité thermique des matrices de GNE ([35, 44, 17]). Elle contient :

- Les données de conductivité thermique (points) dans les directions radiale (en haut) et axiale (en bas) ;

- Les résultats en appliquant les équations (4.4) et (4.5) avec les valeurs de paramètres proposées par Olives [35] et Py [17] (« modèle 2 ») :  $\lambda_o = 3 W.m^{-1}.K^{-1}$ ,  $\rho_{ago} = 45 kg.m^{-3}$  et  $\eta = 0.17$ , obtenues par ajustement sur leurs propres données ( $50 < \rho_{ag} < 400 kg.m^{-3}$ );
- Les résultats en appliquant les équations (4.4) et (4.5) avec les valeurs de paramètres obtenus après calage sur l'ensemble des données disponibles (« modèle 1 ») :  $\lambda_o = 3.3 W.m^{-1}.K^{-1}$ ,  $\rho_{ago} = 51 kg.m^{-3}$  et  $\eta = 0.14$ .

On constate que le « modèle 2 » reproduit convenablement l'évolution de la conductivité thermique axiale et celui de la conductivité radiale pour  $\rho_{ag} < 350 kg.m^{-3}$ . Par contre, pour des valeurs de la densité apparente de la matrice supérieures à  $350 kg.m^{-3}$ , les écarts entre modèle et mesures augmentent progressivement avec la valeur de  $\rho_{ag}$ .

Avec comme différence principale une valeur plus petite de  $\eta$  (0.14 face à 0.17), le « modèle 1 » rend mieux compte des variations de la conductivité radiale sur toute la plage de  $\rho_{ag}$  balayée ( $50 < \rho_{ag} < 1270 kg.m^{-3}$ ). Par contre, il n'arrive pas à reproduire correctement l'évolution de la conductivité axiale.

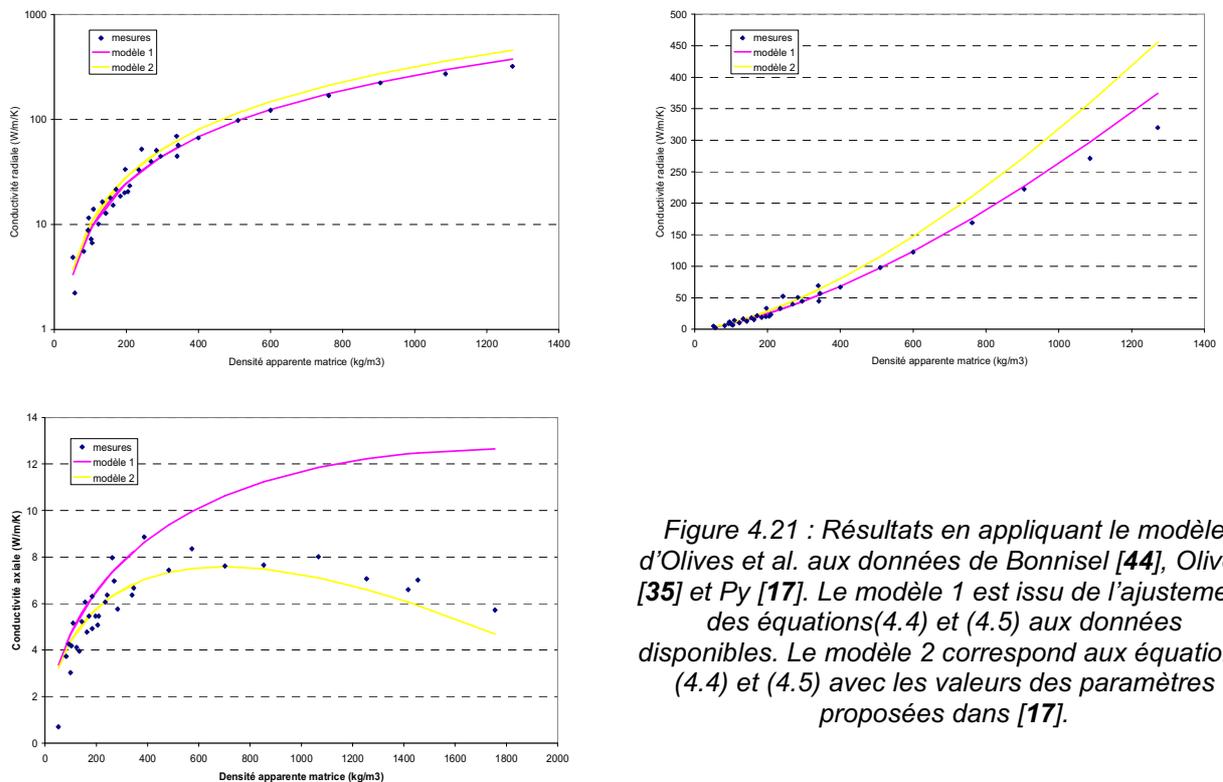


Figure 4.21 : Résultats en appliquant le modèle d'Olives et al. aux données de Bonnisel [44], Olives [35] et Py [17]. Le modèle 1 est issu de l'ajustement des équations(4.4) et (4.5) aux données disponibles. Le modèle 2 correspond aux équations (4.4) et (4.5) avec les valeurs des paramètres proposées dans [17].

Il semble donc nécessaire de travailler avec deux valeurs distinctes de  $\eta$  pour représenter les variations des deux conductivités avec  $\rho_{ag}$  :  $\eta \approx 0.14$ , pour la conductivité radiale ;  $\eta \approx 0.17$  pour la conductivité axiale. Ceci revient à mettre en question l'applicabilité de l'hypothèse de structure en losange sur toute la gamme de valeurs de  $\rho_{ag}$  ; autrement dit, l'équation (4.2).

### **Modélisation des conductivités thermiques effectives des matrices de GNE/sel**

Dans le même article, Olives et al. proposent de modifier l'expression (4.1) pour rendre compte de l'effet du sel sur la tortuosité. Les tortuosités dans les directions radiale et axiale sont maintenant décrites par :

$$\tau_{rd}^2 = \tau_{rd}^2 (1 + \alpha_{rd} \phi_s)^2 \quad \tau_{ax}^2 = \tau_{ax}^2 (1 + \alpha_{ax} \phi_s)^2 \quad (4.6)$$

où  $\phi_s$  désigne la fraction volumique de sel dans la matrice.  $\alpha_{rd}$  et  $\alpha_{ax}$  sont des paramètres ajustables. Les conductivités thermiques deviennent alors :

$$\lambda'_{rd} = \frac{\lambda_{rd}}{(1 + \alpha_{rd} \phi_s)^2} \quad \lambda'_{ax} = \frac{\lambda_{ax}}{(1 + \alpha_{ax} \phi_s)^2} \quad (4.7)$$

Le modèle a été testé sur un nombre réduit de données. Les valeurs de  $\alpha_{rd}$  et  $\alpha_{ax}$  identifiées sont 1.3 et 5.5 respectivement.

Pour les matériaux GNE/sel étudiés dans cette thèse, nous allons supposer en toute modestie:

$$\lambda'_{rd} = f_{rd}(\phi_s) \lambda_{rd} \quad \lambda'_{ax} = f_{ax}(\phi_s) \lambda_{ax} \quad (4.8)$$

et nous allons étudier la forme des fonctions  $f_{rd}(\phi_s)$  et  $f_{ax}(\phi_s)$ . Nous supposons  $\lambda_{rd}$  et  $\lambda_{ax}$  données par les équations (4.4) et (4.5) avec  $\tau_o^2 = 2$ ,  $\lambda_o = 3.3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $\rho_{ago} = 51 \text{ kg.m}^{-3}$ ,  $\eta = 0.14$  (pour  $\lambda_{rd}$ ) et  $\eta = 0.17$  (pour  $\lambda_{ax}$ ). Par ailleurs, seul les échantillons de la série B sont considérés. Nous rappelons que la série A a été élaborée différemment (contrainte plus faible et échantillons plus petits).

Sur la figure 4.22 sont représentées les mesures de conductivité thermique radiale effectuées pour les composites GNE/Sel (série B) face à la densité apparente de la matrice de GNE. Sur la même figure, nous avons reporté les valeurs de conductivité radiale des matrices de GNE prédites par le modèle d'Olives réajusté (« modèle GNE » ; ligne continue en rose). En comparant ce modèle à nos mesures, on constate deux régions avec des comportements bien différenciés : sur la plage  $50 < \rho_{ag} < 400 \text{ kg.m}^{-3}$ , les écarts entre le « modèle GNE » et les mesures augmentent progressivement avec la densité de la matrice ; au-delà de  $\rho_{ag} = 400 \text{ kg.m}^{-3}$ , la tendance s'inverse et modèle et mesure commencent à se rapprocher de plus en plus. Ces domaines de densité apparente correspondent aux plages  $0.8 > \phi_s \geq 0.6$  et  $\phi_s \leq 0.6$  de fraction volumique de sel respectivement. Dans la figure 4.23, apparaît la fonction  $f_{rd}(\phi_s)$ . Les points en bleu correspondent aux calculs de  $f_{rd}(\phi_s)$  effectués à partir des mesures. On les a volontairement unis par des droites (lignes

discontinues en rose) pour marquer les deux régions (A et B sur le graphique) dont on vient de parler. Il semblerait que l'effet de l'ajout du graphite dans la région B ( $0.8 > \phi_s \geq 0.6$ ) est contrebalancé de façon significative par l'excès de tortuosité induit par la présence du sel. Ce n'est qu'en dessous de  $\phi_s = 0.6$  (région A) que le graphite commence à prendre le dessus et à compenser l'effet du sel. A  $\phi_s = 0.44$ , la différence entre la conductivité thermique du matériaux GNE/Sel ( $110 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) et celle de la matrice de GNE ( $137 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) est inférieure à 20%.

La ligne noire en pointillée dans la figure 4.23 est un polynôme d'ordre deux ajusté sur les valeurs des rapports « mesures / modèle GNE » calculées :

$$f_{rd}(\phi_s) \approx 15.4\phi_s^2 - 19.1\phi_s + 6.26 \quad (4.9)$$

Il est aisé de vérifier que ce polynôme n'est pas réductible à une fonction de la forme  $(1 + \alpha_{rd}\phi_s)^{-2}$ , ce qui invalide le modèle d'Olives pour les matériaux GNE/sel.

Enfin, on appelle « modèle GNE/Sel », l'équation qui résulte en reportant l'expression (4.9) dans l'équation (4.7). La courbe verte dans la figure 4.22 représente le modèle GNE/Sel. Bien que la concordance entre mesures et modèle soit intéressante, la valeur de ce dernier n'est qu'anecdotique compte tenu de la façon empirique d'obtenir  $f_{rd}(\phi_s)$ .

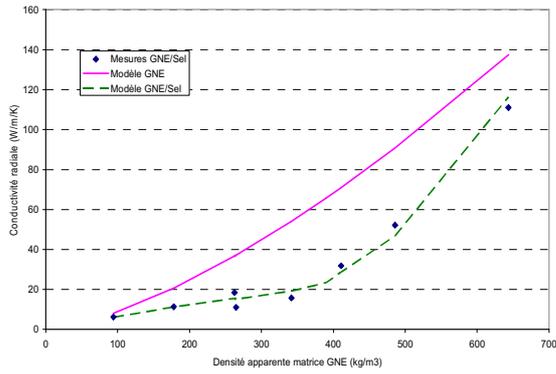


Figure 4.22 : Conductivité radiale des matériaux GNE/Sel : mesures (points), modèle GNE/Sel (ligne discontinue) et conductivité radiale des matrices de GNE (modèle GNE).

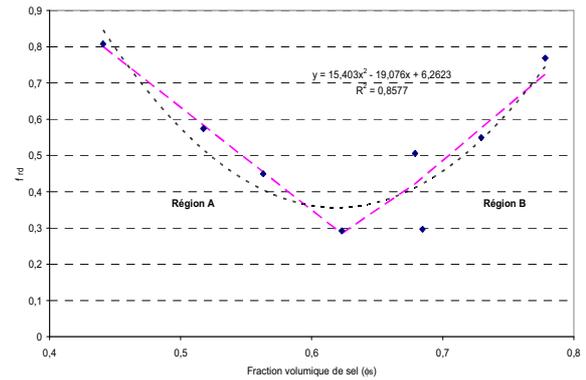


Figure 4.23 : Fonction  $f_{rd}(\phi_s)$  : calcul à partir des mesures (points) et ajustement polynomial (courbe pointillée en noir).

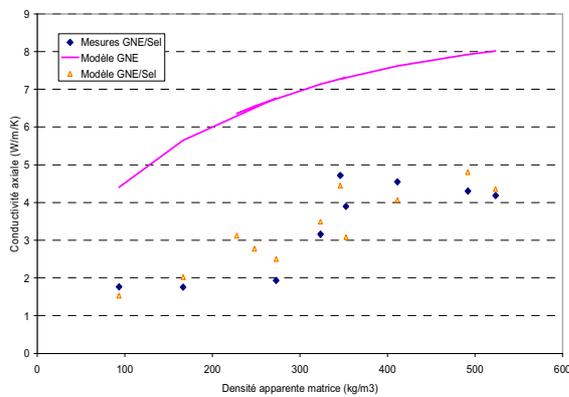


Figure 4.24 : Conductivité axiale des matériaux GNE/Sel : mesures (points), modèle GNE/Sel (ligne discontinue) et conductivité axiale des matrices de GNE (modèle GNE).

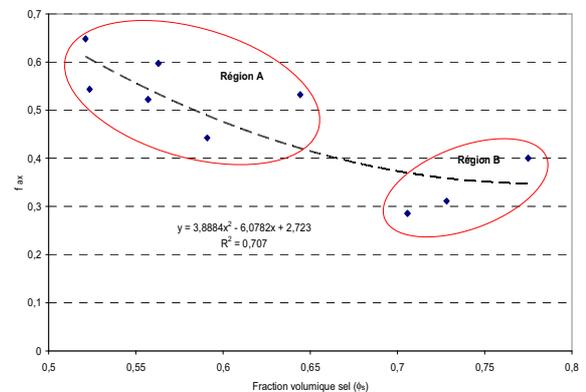


Figure 4.25 : Fonction  $f_{ax}(\phi_s)$  : calcul à partir des mesures (points) et ajustement polynomial (courbe pointillée en noir).

Une analyse semblable a été effectuée pour la conductivité axiale des composites GNE/Sel. Comme précédemment, la figure 4.24 contient les mesures de conductivité correspondant aux composites GNE/Sel (série B) et les valeurs de conductivité axiale des matrices de GNE prédites par le modèle d'Olives (« modèle GNE » ; ligne continue en rose). Sur la figure 4.25, nous avons représenté par des points les valeurs du rapport « conductivité du composite GNE/sel / conductivité de la matrice de GNE » (estimation de  $f_{ax}(\phi_s)$ ). Nous remarquons encore une fois l'existence de deux régions distinctes (régions A et B sur la figure) dont la frontière s'établit à  $\phi_s = 0.65 - 0.70$ . Quoique moins marquées, les tendances d'évolution de  $f_{ax}(\phi_s)$  par rapport à  $\phi_s$  sont semblables à celles de  $f_{rd}(\phi_s)$  dans les régions A et B de la figure 4.23.

La ligne noire en pointillés sur la figure 4.25 est un polynôme d'ordre deux ajusté sur les rapports « mesures / modèle GNE » calculés :

$$f_{ax}(\phi_s) \approx 3.89\phi_s^2 - 6.07\phi_s + 2.72 \quad (4.10)$$

Il s'agit cette fois-ci d'un ajustement de qualité moyenne, mais toujours bien meilleur qu'un ajustement à une fonction de la forme  $(1 + \alpha_{ax} \phi_s)^{-2}$ . Comme pour la conductivité radiale, on constate que le modèle d'Olives ne peut pas expliquer les mesures de conductivité axiale des matériaux GNE/sel.

La structure des matrices GNE/Sel s'avère bien plus compliquée que celle des matrices de GNE et des modèles aussi simples que ceux qu'ont été présentés font carrément défaut. Une bien meilleure compréhension de cette structure, ainsi que de l'effet du sel sur le réseau de graphite, sont nécessaires avant toute autre tentative de modélisation.

## 4.5. Conclusion

Les propriétés thermiques des composites  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  – GNE élaborés par compression uniaxiale ont été étudiées dans ce chapitre. Dans un premier temps, on a montré le problème de reproductibilité associé à la méthode d'élaboration. Nous avons pu constater qu'il découle aussi bien de la difficulté d'obtenir un mélange homogène des particules de GNE et du sel en poudre avant compression, que des effets de bord (voire de taille) qui apparaissent lors de la compression. Le problème de mélange induit des compositions différentes dans des échantillons voulus identiques, tandis que les effets de bord introduisent des différences au niveau de la structure. Ces différences de composition et/ou de structure (et surtout de ces dernières) provoquent des différences significatives de conductivité thermique. L'amélioration de cette voie d'élaboration semble nécessaire et passera par des études approfondies des phases de mélange et de densification.

Les études des propriétés thermiques menées ensuite ont mis en exergue l'impact du GNE sur la conductivité et l'effusivité des composites. A savoir, une augmentation progressive et significative de la conductivité radiale des composites en fonction de la teneur en GNE (on estime à  $110,1 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  la conductivité du  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  – GNE à 40 %m de GNE) et une tendance, certes à la hausse, mais beaucoup plus faible de la conductivité axiale, qui tend vers une valeur asymptotique de  $10 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  environ.

Sachant que les composites étudiés sont destinés à un usage dans le voisinage de la température de fusion de l'eutectique  $\text{KNO}_3\text{-NaNO}_3$ , quelques mesures de conductivité thermiques à  $200^\circ\text{C}$  ont été effectuées. Une baisse de l'ordre de  $1 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  par rapport aux valeurs mesurées à température ambiante a été constatée.

Enfin, nous avons comparé la conductivité radiale des matériaux GNE/sel avec la conductivité des matériaux GFG/Sel (compression isostatique) élaborés et étudiés dans le cadre du projet DISTOR. On a pu constater avec étonnement une coïncidence presque parfaite entre les deux et ce malgré les différences microstructurales significatives entre les deux types de matériaux.

Enfin, nous avons abordé le problème de la modélisation de la conductivité thermique effective des composites  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  – GNE en prenant comme point de départ les modèles existant relatifs à la modélisation des matrices de GNE. Nous avons invalidé des approches qui avait déjà servi à modéliser des matrices de GNE imprégnées de sel ; approches peut être valables pour des faibles contenus de sel, mais inefficaces pour nos matériaux. Nous avons également mis en évidence l'existence de deux régions distinctes dont la frontière se situe à une valeur de fraction volumique de

sel de 0.6-0.7 (densité apparente de la matrice de GNE de 400 kg/m<sup>3</sup>). Dans la région  $0.8 > \phi_s \geq 0.6$ , le fait d'ajouter du graphite semble être contrebalancé de façon significative par l'excès de tortuosité induit par la présence du sel. Ce n'est qu'en dessous de  $\phi_s = 0.6$  que le graphite commence à prendre le dessus et à compenser l'effet du sel. A  $\phi_s > 0.44$  les matrices de GNE/Sel ressemblent déjà fortement aux matrices de GNE. Des modèles empiriques ont été enfin explicités. Ils sont capables de prédire correctement l'évolution des conductivités thermiques (axiale et radiales) des matériaux GNE/sel en fonction de la densité de la matrice de graphite et de la fraction volumique du sel. Néanmoins, nous les jugeons anecdotiques car assujettis aux observations utilisées pour les obtenir.

La structure des matrices GNE/Sel est bien plus complexe que celle des matrices de GNE et des modèles aussi simples que ceux qui ont été présentés ne peuvent que faire défaut. A notre avis, il sera nécessaire de mieux comprendre cette structure, ainsi que l'effet du sel sur le réseau de graphite, avant toute autre tentative de modélisation.

## **Synthèse, conclusion et perspectives**

On finalise cette partie du document avec une synthèse des résultats technologiques et scientifiques obtenus. Ainsi, nous proposons une comparaison des différents matériaux étudiés sous les angles suivants : a) les difficultés d'élaboration et les besoins d'amélioration ; b) l'efficacité du graphite en tant qu'intensificateur des transferts ; et c) le niveau de compréhension acquis et les efforts additionnels de recherche requis.

### **Comparaison des méthodes d'élaboration**

Dans le chapitre 1, nous avons présenté les deux méthodes d'élaboration étudiées et les protocoles associés. Nous recensons ici les problèmes majeurs rencontrés, sur lesquels il faudra encore travailler. Il s'agit de la porosité pour les matériaux obtenus par dispersion et de la reproductibilité pour les matériaux élaborés par compression.

La porosité des matériaux élaborés par dispersion se situe entre 15 et 30% (composites ayant plus de 5%<sub>m</sub> de graphite SFG) et diminue significativement la conductivité thermique des matériaux. On a pu constater au chapitre 2 que : a) le protocole #2 permet de la réduire légèrement, mais insuffisamment ; b) elle tend à augmenter avec la quantité de graphite SFG ajouté ; c) elle est d'autant plus faible que la taille des particules SFG augmente.

Pour les matériaux élaborés par compression uniaxiale, l'existence d'un espace pouvant encaisser l'expansion volumique du sel lors sa fusion dans la matrice de GNE est nécessaire. La porosité est donc décidée, comme expliqué au chapitre 2, lors de l'élaboration. Nous l'avons fixé arbitrairement à 20-30% pour l'ensemble des composites étudiés.

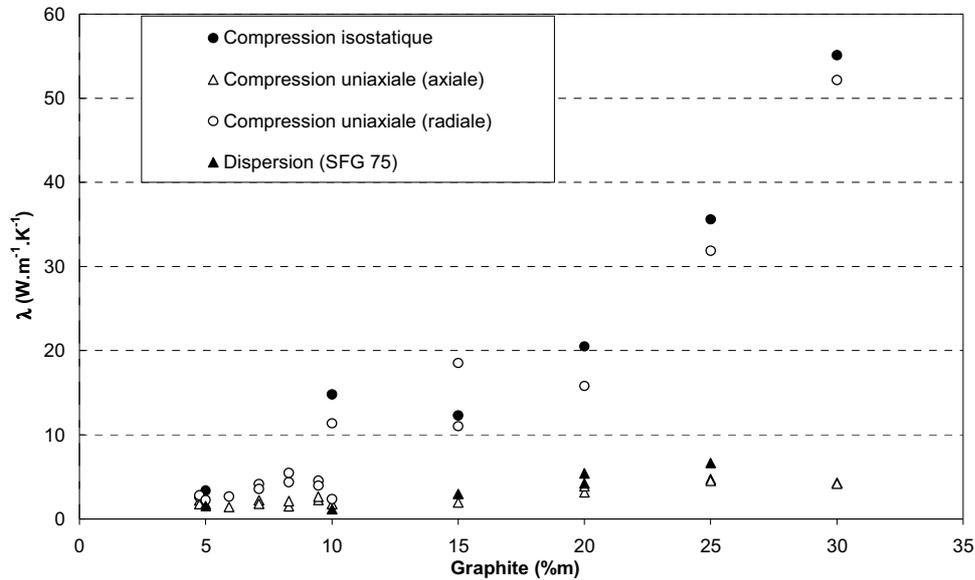
La reproductibilité n'est pas un problème dans l'élaboration par dispersion. Par contre, la compression uniaxiale peut aboutir à des échantillons supposés « identiques » montrant des différences dans leurs propriétés thermiques allant de 7 à 25%. Ces disparités sont en rapport avec :

- un mélange des vermicules de GNE/grains de sel avant compression dont l'homogénéité est difficile à assurer des part la différence des masses volumique entre le graphite et le sel ;
- un effet de taille (effets de bord lors de la compression) qu'il serait souhaitable de mieux comprendre ;
- des effets de vitesse de compression et de contrainte qu'il faudra contrôler.

Aussi, l'homogénéité des composites issus de la compression est moindre que celle des composites obtenus par dispersion. Pour ces derniers, on a constaté des différences dans les propriétés thermiques de sous-échantillons d'un échantillon père inférieures à 5%. Pour la compression, on va trouver les problèmes inéluctables des effets de bord et de densification inégale en hauteur.

### Comparaison des composites en termes des propriétés thermiques effectives

Les propriétés thermiques des composites élaborés par dispersion et par compression ont été respectivement présentées dans les chapitres 3 et 4. La figure ci-dessous regroupe l'ensemble des conductivités thermiques estimées et permet de comparer nos matériaux à ceux du projet DISTOR obtenus par compression isostatique.



*Récapitulatif des conductivités thermiques des composites graphite/sel en fonction de la teneur en graphite.*

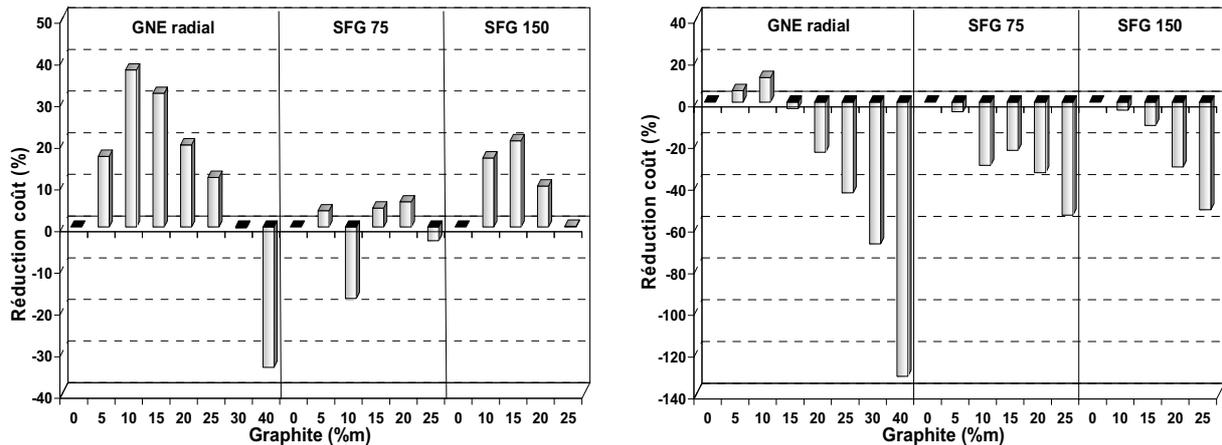
On constate d'une manière générale une amélioration de la conductivité thermique des composites en fonction de la teneur en graphite et ce quelle que soit la voie d'élaboration. Concernant les matériaux élaborés par compression, on retrouve bien l'orthotropie lié à la méthode d'élaboration avec une conductivité radiale beaucoup plus importante qu'en axiale. La conductivité axiale des composites élaborés par compression est comparable à celle des matériaux élaborés par dispersion, tandis que la conductivité radiale est plus proche de celle des matériaux élaborés par compression isostatique. Pour atteindre une conductivité thermique effective de  $8 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , il faudra disperser 25%*m* environ de SFG dans le sel ; tandis que moins de 10%*m* de GNE, compressé avec du sel, suffisent pour aboutir au même résultat.

Les mêmes conclusions peuvent être tirées au sujet de l'effusivité thermique. Concernant la chaleur volumique, que ce soit pour les matériaux élaborés par compression ou par dispersion, on a constaté une baisse de sa valeur lorsque la teneur en graphite du composite augmente. Il faut également signaler que la chaleur volumique des matériaux élaborés par dispersion est systématiquement supérieure à celle des matériaux élaborés par compression. Cela provient notamment du fait de la plus faible capacité calorifique du GNE par rapport à celle du graphite SFG.

La méthode d'élaboration par compression (isostatique ou uniaxiale) est bien plus efficace que la méthode d'élaboration par dispersion dans un objectif d'intensification de transferts. A ceci on peut ajouter le fait que les problèmes éventuels de séparation du SFG et du sel, liés à leur différence de masses volumiques quand le sel est à l'état liquide, ne se pose pas dans les matériaux issus de la

compression. Par contre, il a été montré, dans le travail de thèse de Jérôme Lopez [37], qu'un confinement excessif du sel dans la matrice de GNE (manque de porosité) peut entraîner la rupture de celle-ci et la fuite du sel, ainsi que des dégradations des propriétés thermodynamiques du sel.

Par ailleurs, nous avons étudiés dans [73,74] les réductions des coûts d'investissement attendues par l'utilisation de nos matériaux dans des systèmes de stockage de type échangeur à tube utilisant la vapeur d'eau saturée comme fluide caloporteur. La figure ci-dessous montre les résultats correspondant à un système de stockage de 500 kWh avec deux scenarii de temps de charge/décharge : 2h (forte puissance) et 8h (faible puissance).



Réduction (valeurs positives) / augmentation (valeurs négatives) des coûts d'investissement apportés par l'ensemble des composites élaborés pour des temps de charge de 2h (gauche) et 8h (droite).

On constate, encore une fois, l'avantage des matériaux GNE/sel face aux composites SFG/sel. Par exemple, grâce aux propriétés de transfert radiales du  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  – GNE (10%<sub>m</sub>), on arrive à réduire respectivement de 37,7 et 12 % l'investissement en matières premières selon que l'on considère des durées de charge de 2 et 8 h ; alors que pour le matériaux  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  – SFG (10%<sub>m</sub>) le bénéfice est négligeable, voire inexistant. Au travers de ce même graphique, on constate : a) l'intérêt tout particulier de nos matériaux pour des applications à forte puissance ; et b) l'existence d'un optimum se situant autour de 10 %<sub>m</sub> de GNE et correspondant à une conductivité thermique de  $11,4 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  environ. Pour la même application (échangeur à tube avec de la vapeur d'eau saturée), on trouve des résultats semblables pour toute capacité de stockage.

## **Niveau de compréhension acquis et efforts additionnels de recherche nécessaires**

L'évolution de la conductivité thermique des composites élaborés par dispersion a convenablement été décrite par la TMEG. Les paramètres identifiés du modèle ont permis d'approfondir la compréhension des effets de la structure des particules (tailles et formes) sur le comportement de la conductivité thermique des composites  $\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$  – SFG.

Concernant les matériaux élaborés par compression, les modèles empiriques existants ne sont pas capables de prédire correctement l'évolution des conductivités thermiques (axiale et radiale) des matériaux GNE/sel en fonction de la densité de la matrice de graphite et de la fraction volumique du sel. Cela tient du fait de deux problèmes majeurs : la reproductibilité de la mise en forme par compression et le manque de compréhension de la structure des matériaux GNE/sel. Les efforts additionnels nécessaires à la modélisation de l'évolution de la conductivité thermique de ces matériaux passent d'abord par la compréhension de leur structure. Il s'agit alors :

- De mieux comprendre le processus de mélange de matériaux présentant une grande différence de masse volumique ainsi qu'une importante différence de taille ;
- D'approfondir les connaissances sur les mécanismes de densification de mélange d'un milieu déformable (vermicule de GNE) et rigide (sel). En particulier, il s'agira de bien saisir les modifications de tortuosité causées par le sel sur le GNE au cours de la densification.



*PARTIE 2 :*

***DEVELOPPEMENT DE METHODES DE  
CARACTERISATION DES PROPRIETES  
THERMOPHYSIQUES DE MATERIAUX  
CONDUCTEURS ORTHOTROPES***



# Nomenclature

Symboles grecs		
$\beta^*$	Coefficient directeur	$K.s^{-1}$
$\rho c_p$	Capacité calorifique de l'échantillon à pression constante	$J.m^{-3}.K^{-1}$
$\tilde{\rho}c_p$	Capacité calorifique estimée de l'échantillon	
$\lambda_r$	Conductivité thermique dans la direction $O\vec{r}$	$W.m^{-1}.K^{-1}$
$\lambda_z$	Conductivité thermique dans la direction $O\vec{z}$	
$\tilde{\lambda}_z$	Conductivité thermique estimée dans la direction $O\vec{z}$	
$\tilde{\lambda}_r$	Conductivité thermique estimée dans la direction $O\vec{r}$	
$\lambda = \lambda_z^{1/3} \lambda_r^{2/3}$	Conductivité thermique équivalente	$m^2.s^{-1}$
$\alpha_z = \lambda_z / \rho c_p$	Diffusivité thermique dans la direction $O\vec{z}$	
$\alpha_r = \lambda_r / \rho c_p$	Diffusivité thermique dans la direction $O\vec{r}$	
$\alpha = \lambda / \rho c_p$	Diffusivité thermique équivalente	
$h$	Coefficient d'échange latéral	$W.m^{-2}.K^{-1}$
$\sigma_{\lambda_z}$	Ecart type	$W.m^{-1}.K^{-1}$
$\sigma_{\lambda_r}$		
$\sigma_{\rho c_p}$		$J.m^{-3}.K^{-1}$
$\varphi$	densité de flux	$W.m^{-2}$
$R_c$	Résistance de contact sonde/échantillon	$K.m^2.W^{-1}$
$R_{th}$	Résistance thermique du système sonde-échantillon	
$\gamma_m^2$	valeur propre	(-)
$\beta_m^2$	valeur propre	(-)
$\psi(\beta_m, r)$	fonction propre correspondant à la valeur propre $\beta_m^2$	(-)
$\eta_p^2$	Valeur propre	(-)
$\phi(\eta_p, z)$	fonction propre correspondant à la valeur propre $\eta_p^2$	(-)
$\gamma_{mp}^2$	Valeur propre	(-)
$V_{mp}(r, z)$	fonction propre correspondant à la valeur propre $\gamma_{mp}^2$	(-)
$V_m(M)$	Fonctions propres normalisées	(-)
$\Gamma$	Fonction Gamma	(-)
$\sigma_\varepsilon$	Ecart type sur le résidu	$K$
$\varepsilon_{\max}$	Ecart maximal	$K$
$\varepsilon^2 = \lambda_z / \lambda_r$	Facteur d'anisotropie	(-)

## Nomenclature

$r, z$	Variable d'espace	$m$
$L R$	Dimension de l'échantillon	$m$
$t$	variable temps	$s$
$T$	Température	$K$
$T_{t \rightarrow \infty}$	Température aux temps longs	$K$
$t_f$	Durée de l'expérience	$s$
$T_L^*$	Température face arrière à $t = t_f$	$K$
$\Delta T^*$	Différence de température entre face avant et arrière à $t = t_f$	$K$
$G$	Fonction de Green	(-)
$P$	Puissance	$W$
$mc$	Capacité calorifique surfacique de la sonde chauffante	$J.m^{-2}.K^{-1}$
$J_0$	fonction de Bessel de première classe et d'ordre 0	(-)
$J_1$	fonction de Bessel de première classe et d'ordre 1	(-)
$Bi$	Nombre de Biot	(-)
<b>Indices</b>		
ib	Isolant en bas du dispositif	
ih	Isolant en haut du dispositif	
ec	échantillon	
ar	Face arrière de l'échantillon	
av	Face avant de l'échantillon	
sd	Face avant de la sonde	
s	Face sud	
n	Face nord	

## **Chapitre 5: Introduction et objectifs.**

*Ce chapitre présente dans un premier temps les méthodes de caractérisation thermique de matériaux les plus couramment utilisées. Parmi toutes ces méthodes, deux d'entre elles ont retenu notre attention du fait de leur simplicité de mise en œuvre. Il s'agit de la méthode du plan chaud et de la méthode du disque chaud.*

*Ces deux méthodes sont alors décrites avec plus de détail dans la deuxième section du chapitre. On les présente d'abord dans leurs versions originales et on retrace ensuite les évolutions qu'elles ont subi au cours des années.*

*La dernière partie de ce chapitre pointe les limites de ces deux méthodes vis-à-vis de leur adéquation aux spécificités des matériaux graphite/sel étudiés. Elle introduit également les travaux entrepris dans les chapitres suivants pour répondre à l'objectif fixé : **Proposer des méthodes simples et robustes permettant la caractérisation thermique complète de matériaux orthotropes à partir d'une seule expérience ne nécessitant qu'un seul échantillon.***

## 5.1. Méthodes de caractérisation thermique de matériaux couramment utilisées.

Les transferts par conduction au sein d'un milieu homogène sont caractérisés par le tenseur de conductivités thermiques et par la chaleur volumique ( $\rho c_p$ ) du milieu. Pour des matériaux isotropes, le tenseur de conductivité se réduit à un scalaire que nous noterons ( $\lambda$ ). La conductivité thermique rend compte de l'habilité du milieu à conduire la chaleur, tandis que la chaleur volumique traduit sa capacité à stocker l'énergie. Ces deux grandeurs définissent deux autres propriétés : la diffusivité thermique ( $\alpha = \lambda / \rho c_p$ ) et l'effusivité thermique ( $E = \sqrt{\rho c_p \lambda}$ ). Cette dernière exprime la capacité du milieu à imposer sa température au contact d'un autre milieu. Ainsi, caractériser thermiquement un matériau correspond à estimer au moins deux de ces quatre grandeurs.

Les méthodes de caractérisation thermique peuvent se scinder en deux groupes principaux : les méthodes stationnaires et les méthodes dynamiques. Nous décrivons ici de façon succincte leurs principes de fonctionnement.

### Méthodes stationnaires

Ces méthodes ne s'occupent que de la mesure de la conductivité thermique des matériaux. Elles reposent sur un principe simple qui consiste à instaurer un gradient de température stationnaire et monodimensionnel au sein du matériau et à déterminer ensuite la conductivité thermique à l'aide de la loi de Fourier. La méthode de la plaque chaude gardée [75] est la méthode stationnaire de référence.

Malgré la simplicité du principe, les méthodes stationnaires sont difficiles à mettre en œuvre et nécessitent souvent des temps très longs correspondants au temps d'établissement du régime permanent. Par ailleurs, la caractérisation complète du matériau exigerait une mesure de  $\rho c_p$  par d'autres moyens.

Ces raisons nous font écarter de notre étude les méthodes stationnaires. Les méthodes dynamiques trouvent alors un réel intérêt du fait des courts temps d'expérience, de la simplicité de leur mise en œuvre et des possibilités qu'elles offrent d'évoluer vers une caractérisation thermique complète.

### Méthodes dynamiques

Le tableau 5.1 propose un rappel synoptique des techniques les plus répandues et utilisées à ce jour. Toutes ces méthodes reposent sur un même principe qui consiste à solliciter thermiquement un échantillon, à observer la réponse thermique en un ou plusieurs points du dispositif expérimental et à remonter aux propriétés thermiques recherchées par l'intermédiaire d'un modèle simple de

transferts. Elles diffèrent essentiellement de part la façon dont elles cherchent la simplicité qui conditionne ensuite les possibilités d'estimation.

Méthode	Milieu	Transfert	Sollicitation	Réponse	Estimation
Flash (cf.[76])	Fini	1D		T faces avant ou arrière	$\alpha$
Périodique (cf.[83])	Fini	1D		T faces avant et arrière	$\lambda, \alpha$
Fil chaud (cf.[84])	Infini	1D		T fil	$\lambda$
Plan chaud	Semi-infini (cf.[85])	1D		T face avant	$E$
	Fini (cf.[86])	1D		T face avant et arrière	$\lambda, E$
Ruban chaud	Semi-infini (cf.[87])	1D		T faces avant	$\lambda, E$
Disque chaud [88]	Infini	2D		T moyenne de la sonde	$\lambda, \alpha$

Tableau 5.1 : Moyens de caractérisation des propriétés thermiques.

Il s'agit pour la plupart de ces méthodes d'établir des conditions expérimentales (type de dispositif, type de sollicitation, points d'observation) qui permettent ensuite d'estimer les propriétés thermiques recherchées par inversion d'un modèle simple. Ainsi, on cherche souvent :

- des conditions permettant de réduire la conduction à un problème de transferts monodimensionnel (ex. : méthodes flash, périodique, fil chaud et plan chaud) ;
- des situations où l'échantillon peut être assimilé à un milieu infini (ex. méthode du disque chaud) ou semi – infini (ex. : méthodes du fil chaud et du plan chaud originales) ;
- des sollicitations (en flux), telles que des impulsions (ex. : méthode flash), des échelons (ex. : méthodes de fil chaud, plan chaud et disque chaud) ou périodiques (ex. : méthode périodique) ;
- des points d'observation facilement accessibles, souvent en face avant/arrière de l'échantillon ou sur l'élément chauffant (ex. : méthodes du fil chaud et du disque chaud).

On constate alors que selon les conditions expérimentales définies, les possibilités d'identification diffèrent (voir tableau 5.1). Par exemple, la méthode flash [76] permet la détermination de la diffusivité thermique en soumettant la face avant d'un échantillon cylindrique à une impulsion photothermique, à l'aide d'un flash (tube à éclat) ou d'un laser, et en exploitant la réponse en température sur la face avant ou arrière de l'échantillon étudié. Ces méthodes (cf.[77,78,79,80,81,82]) permettent également la détermination des diffusivités thermiques selon les deux directions de matériaux orthotropes.

En émettant l'hypothèse de transferts unidirectionnels en milieu-fini et en sollicitant le matériau de manière périodique, il devient possible d'estimer à la fois la diffusivité et la conductivité thermiques [83].

Les méthodes à sonde plane (plan chaud et disque chaud) utilisent une résistance chauffante de géométrie variable pour solliciter l'échantillon. Elles illustrent bien les conséquences du choix du type de sollicitation et/ou des hypothèses de transferts (milieu et dimensions) effectués. Par exemple, la méthode du plan chaud en milieux semi-infinis et transferts 1D, avec des sollicitations en flux de type échelon et l'observation de la température en face avant [85], ne donne accès qu'à l'effusivité thermique du milieu. Tandis qu'en se plaçant en milieu fini, tout en gardant une sollicitation échelon, l'identification simultanée de l'effusivité et de la conductivité thermiques devient possible [86]. On accède également à ces deux propriétés, à l'aide d'une méthode de type ruban chaud et en remplaçant l'échelon en flux par un signal pseudo aléatoire [87]. De plus, dans un cadre milieu infini et transferts bidimensionnels (disque chaud), avec des sollicitations échelon en flux, la mesure simultanée de la conductivité et de la diffusivité thermiques devient possible [88].

Du fait de leur simplicité de mise en œuvre, de leur rapidité et de leur faible coût, ces méthodes ont suscité notre intérêt. Par la suite, nous les décrivons avec plus de détail, en retraçant également leurs évolutions respectives.

## 5.2. Méthodes dynamiques à sonde plane

Les méthodes du plan chaud et du disque chaud sont à la base des travaux développés dans ce manuscrit. Cette section revient donc sur ces deux techniques en mettant l'accent sur les évolutions qu'elles ont subi au cours du temps, car c'est là que nous avons trouvé notre inspiration pour la suite.

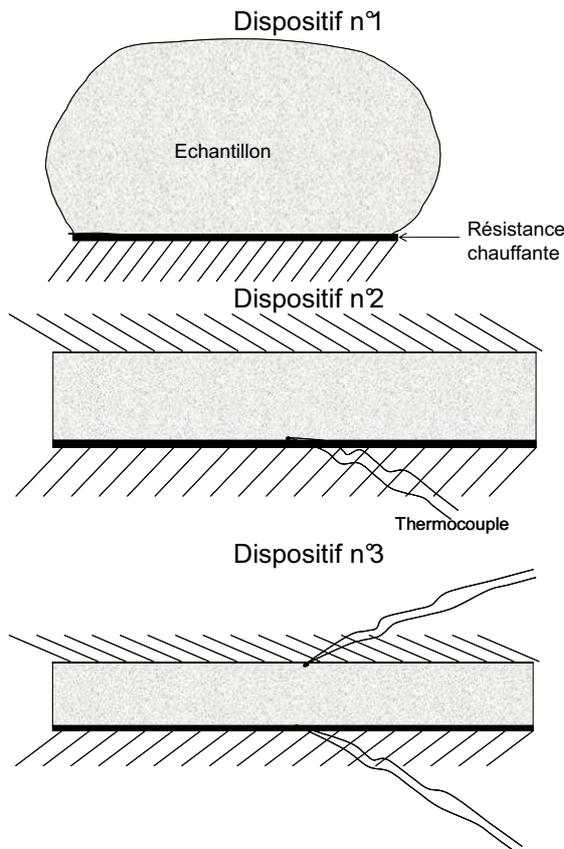
### 5.2.1. Evolutions de la méthode du plan chaud

La figure 5.1 présente par ordre chronologique d'apparition les principaux dispositifs de type plan chaud connus à ce jour. Comme précédemment, on note  $\rho c_p$ ,  $\lambda$ ,  $\alpha$  et  $E$  les propriétés thermiques des matériaux à caractériser. La capacité thermique de la sonde chauffante est désignée par  $(mc)$  et on note  $R_c$  la résistance thermique de contact entre la sonde et l'échantillon. Pour des milieux finis,  $L$  représente l'épaisseur de l'échantillon.  $\varphi$  désignera la densité de flux d'énergie thermique (échelon) apportée par la sonde.

Le **dispositif n°1** est celui de la méthode telle qu'elle est apparue [89]. Il est constitué d'une résistance plane chauffante dont la surface correspond à celle de la face de l'échantillon avec laquelle elle est mise en contact. Cette résistance est supposée non capacitive ( $mc = 0$ ) et le contact entre la sonde et l'échantillon est supposé parfait ( $R_c = 0$ ). L'échantillon, lui, doit être assimilable à un milieu semi-infini le temps de la durée de l'expérience. La surface face arrière de la sonde est parfaitement isolée. Dans ce cadre de travail, on montre que la température en face avant de l'échantillon évolue selon (cf. [90]):

$$T_{av}(t) - T_{\infty} = \frac{2\varphi}{\sqrt{\pi E}} t^{1/2} \quad (5.1)$$

quand le dispositif est en équilibre thermique avec son environnement à l'instant  $t=0$  et que la température  $T_{\infty}$  de celui-ci est constante tout au long de l'expérience. Ce dispositif permet donc d'identifier l'effusivité thermique du milieu testé. Cependant, il apparaît quelque peu contraignant en termes de dimensions pour des matériaux fortement diffusifs. En effet, il faudra dans ce cas des échantillons avec des épaisseurs importantes pour respecter l'hypothèse de milieu semi-infini. De plus, la méthode ne permet que l'estimation de l'effusivité et nécessite donc d'autres techniques pour compléter la caractérisation.



- Hypothèse du milieu semi-infini et transferts 1D
- Résistance chauffante supposée immatérielle ( $mc = 0$ ,  $R_c = 0$ )
- Mesure de la température de la sonde
- Estimation de l'effusivité  $E$
  
- Hypothèse du milieu fini et transferts 1D
- Prise en compte des paramètres de la sonde ( $mc$ ,  $R_c$ )
- Mesure de la température de la sonde
- Estimation de  $E$  et  $\lambda$
  
- Hypothèse du milieu fini et transferts 1D
- Prise en compte de  $mc$  et  $R_c$
- Mesure de la température aux faces avant et arrière de l'échantillon.
- Estimation de  $E$  et  $\lambda$

Figure 5.1 : Dispositifs de type plan chaud.

Pour pallier à ces inconvénients, la technique a donc évolué vers les **dispositifs n°2 et n°3** pour lesquels l'hypothèse du milieu semi-infini est abandonnée au profit de celle du milieu-fini. Le dispositif devient alors un sandwich multicouche « isolant – sonde – échantillon – isolant » conçu de façon à ce que les transferts thermiques restent unidirectionnels. En supposant les isolants parfaits et la sonde immatérielle, on peut montrer (voir Chapitre 6) que l'évolution thermique aux temps longs, en face avant et arrière de l'échantillon, s'écrit :

$$T_{av}(t) - T_{\infty} = \frac{1}{3} \frac{\varphi L}{\lambda} + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t \quad T_{ar}(t) - T_{\infty} = -\frac{1}{6} \frac{\varphi L}{\lambda} + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t \quad (5.2)$$

quand le dispositif est en équilibre thermique avec son environnement à l'instant initial et que la température de celui-ci  $T_{\infty}$  reste constante tout au long de l'expérience. Même si ces expressions ne

représentent que des évolutions aux temps longs, elles mettent en avant les avantages de passer d'une configuration en milieu semi-infini à une configuration en milieu fini. En effet, la réponse thermique, aussi bien en face avant qu'en face arrière, comporte maintenant des informations qui permettraient une caractérisation thermique complète de l'échantillon. Notez que dans les équations (5.2), on voit apparaître la conductivité thermique et la capacité thermique du milieu.

Bien sûr, dans des conditions non idéales (isolant imparfait et sonde matérielle) le pari n'est pas toujours gagné, car apparaissent également dans la solution du problème de transferts les paramètres thermiques des isolants (effusivité thermique) et de la sonde (cf. [86]). L'effusivité des isolants est généralement supposée connue. Par contre, les paramètres  $mc$  et  $R_c$  viennent se rajouter à la liste de paramètres à identifier. Il s'agit alors de définir adéquatement les conditions expérimentales (épaisseur de l'échantillon, puissance de chauffage et durée de l'expérience) pour arriver à une estimation non biaisée de  $E$  et  $\lambda$ . Les travaux de Jannot et al. (Annexe B), montrent que l'observation simultanée des températures en face avant et arrière de l'échantillon faciliterait la tâche. Enfin, on remarquera que la seule différence entre les dispositifs n°2 et n°3 est le nombre de points d'observation.

### 5.2.2. La méthode du disque chaud

La méthode du disque chaud, introduite par Gustafsson [88], repose sur l'observation de la température moyenne d'une source plane circulaire, placée dans un milieu infini, et délivrant une puissance d'énergie thermique constante dans le temps. Le dispositif associé comporte alors une sonde chauffante plane et circulaire placée entre deux échantillons identiques pouvant s'assimiler à un milieu infini pendant la durée de l'expérience (voir schéma ci-dessous). L'élément chauffant se présente sous forme d'un disque constitué d'une double spire d'un élément résistif inséré entre deux feuilles minces d'isolant électrique. La double spire permet à la fois d'assurer un chauffage uniforme du disque et d'en mesurer la température moyenne. Gustafsson montre que l'évolution de la température moyenne de la sonde au cours du temps est :

$$T_{sd}(\tau) - T_{\infty} = P R_c + P (\pi^{3/2} r \lambda)^{-1} F_s(\tau) \quad \tau = \frac{\sqrt{\alpha t}}{r} \quad (5.3)$$

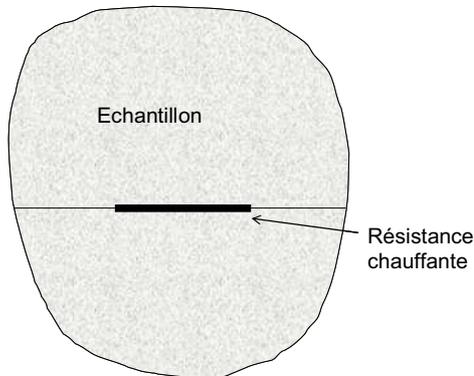
avec :

$$F_s(\tau) = [m(m+1)]^{-2} \int_0^{\tau} d\sigma \sigma^{-2} \sum_{l=1}^m l \sum_{k=1}^m k \exp\left(\frac{-(l^2 + k^2)}{4m^2 \sigma^2}\right) I_0\left(\frac{lk}{2m^2 \sigma^2}\right)$$

où  $P$  représente la puissance délivrée par la sonde,  $r$  est le rayon de la sonde,  $m$  le nombre de spires de la sonde et  $I_0$  la fonction de Bessel modifiée d'ordre 0. L'équation (5.3) révèle donc la possibilité d'estimer à la fois la diffusivité thermique  $\alpha$  et la conductivité thermique  $\lambda$  du matériau.

Une amélioration du modèle de transferts de ce type de dispositif a été proposée récemment par Jannot et al. [91]. A travers une approche de modélisation quadripolaire [92], les auteurs prennent en compte l'inertie de la sonde ( $mc$ ) et la résistance de contact sonde/échantillon ( $R_c$ ).

On constate qu'en milieu infini, mais avec des transferts bidimensionnels, la caractérisation thermique complète de matériaux isotropes devient possible.



- Hypothèse du milieu infini et transferts 2D
- Résistance chauffante supposé immatérielle ( $mc = 0$  et  $R_c = 0$ )
- Mesure de la température moyenne de la résistance
- Détermination de  $\alpha$  et  $\lambda$

Figure 5.2 : Dispositif du disque chaud.

### 5.3. Adaptation aux spécificités des matériaux étudiés

Parmi les matériaux étudiés dans le cadre de cette thèse, les composites élaborés par dispersion sont relativement homogènes et ne possèdent pas de spécificité particulière. Par contre, les composites élaborés par compression sont fortement hétérogènes, orthotropes et difficilement reproductibles. L'ordre de grandeur des effusivités ( $1000$  à  $14000 \text{ J.m}^{-2}.\text{K}^{-1}.\text{s}^{-1/2}$ ) et des conductivités ( $0,5$  à  $120 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) thermiques à mesurer est illustré dans la figure 5.3. Par ailleurs, le degré d'orthotropie (rapport des conductivités thermiques) de composites à plus de 30% de graphite en masse est très important ( $\approx 20$ ).

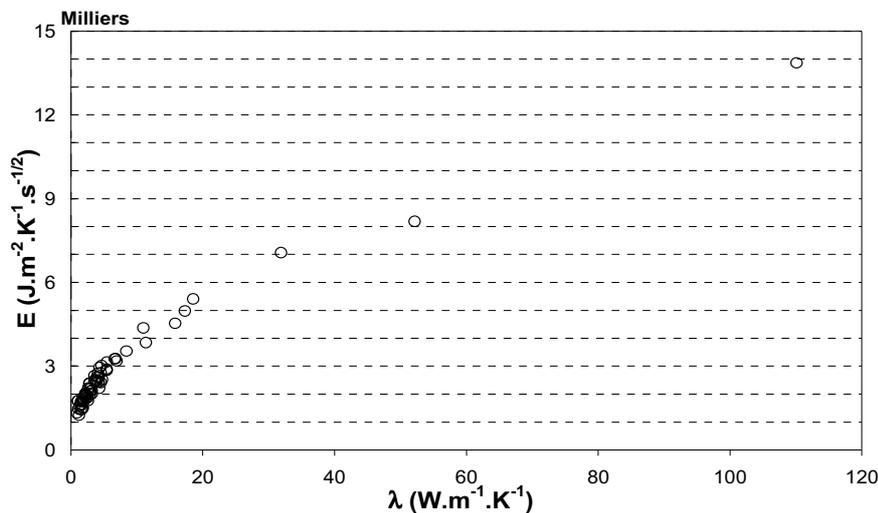


Figure 5.3 : Récapitulatif des propriétés thermiques des matériaux graphite/sel

En disant cela nous pointons déjà les limites des méthodes de caractérisation thermique existantes. Pour la méthode du plan chaud, il sera nécessaire d'effectuer deux expériences distinctes pour déterminer l'ensemble des propriétés thermiques de ces matériaux (capacité thermique et conductivités thermiques axiale et radiale). Nous rappelons que dans un cadre de transferts

monodimensionnels, seule la conductivité thermique dans la direction des transferts peut être estimée. Ceci est particulièrement ennuyeux pour des matériaux à fort degré d'orthotropie, car au besoin de deux expériences s'ajoute celui d'échantillons de tailles différentes. Nous sommes alors obligés d'élaborer deux échantillons distincts avec le problème déjà signalé de reproductibilité.

Pour le dispositif du disque chaud, la situation empire. Sans parler d'orthotropie, la méthode, dans son état actuel de développement, exige d'utiliser deux échantillons identiques entre lesquels vient se placer la sonde chauffante. On retrouve encore une fois le problème de reproductibilité des composites, aggravé par celui d'une hétérogénéité macroscopique qui empêche de supposer que les deux moitiés d'un échantillon élaboré par compression puissent être identiques. Comme pour la méthode du plan chaud, la caractérisation thermique complète (2 conductivités, 1 capacité thermiques) de nos matériaux exige donc deux expériences sur deux échantillons.

L'**objectif principal** de ce travail est de proposer une méthode de caractérisation thermique complète de matériaux orthotropes et conducteurs n'exigeant qu'une seule expérimentation sur un seul échantillon. L'idée centrale que nous comptons développer prend son inspiration dans les évolutions que nous avons décrites pour la méthode du plan chaud. En effet, on a vu qu'abandonner l'hypothèse de milieu semi-infini au profit de celle de milieu fini élargissait les possibilités d'estimation (possibilité de caractérisation complète de milieux isotropes avec les nouveaux dispositifs (n°2 et 3)). Ainsi, notre idée est de rendre fini le dispositif du disque chaud dans l'espoir de passer d'un scénario où seuls deux paramètres peuvent être estimés à un autre où la caractérisation complète de matériaux orthotropes devient possible.

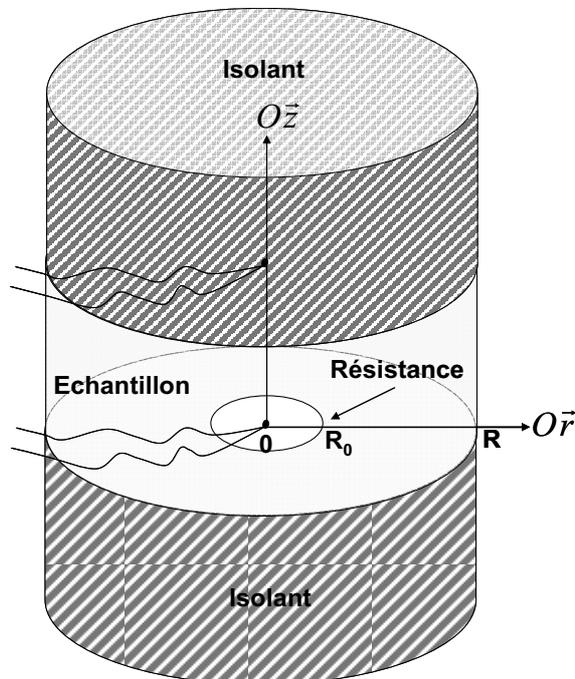


Figure 5.4 : Dispositif expérimental envisagé.

La figure 5.4 montre le schéma du dispositif imaginé et étudié par la suite. Il est constitué de deux couches d'isolation thermique de part et d'autre du système sonde plane – échantillon. On

notera qu'il suffirait que le rayon  $R_0$  de la sonde soit égal au rayon  $R$  de l'échantillon pour retrouver un dispositif de type plan chaud.

**Le travail effectué**, présenté dans les trois chapitres suivants, s'est déroulé suivant la logique que nous décrivons ci-dessous :

- 1) Il fallait tout d'abord s'assurer de la pertinence de l'idée de rendre fini le dispositif du disque chaud. Ainsi, le chapitre 6 est dédié à l'étude des solutions analytiques du problème de conduction dans un dispositif comme celui de la figure 5.4, avec des hypothèses de sonde immatérielle et d'isolation parfaite. De plus, le problème de définition de conditions expérimentales « optimales » (taille des échantillons et de la sonde, durée des expériences, puissance de chauffage à appliquer, points d'observation) est posé et traité.
- 2) Ensuite, il fallait s'assurer que le passage à un dispositif réel (sonde matérielle et isolation imparfaite) ne venait pas entraver nos objectifs. Ainsi, le Chapitre 7 est dédié à la modélisation du dispositif de la figure 5.4 et à l'exploitation de ces modèles dans le double but de comprendre le comportement des dispositifs imaginés, et d'analyser leur potentiel vis-à-vis de la caractérisation thermique des matériaux.
- 3) Enfin, il fallait se doter de stratégies/méthodes d'identification de paramètres aussi simples et robustes que possible. Le Chapitre 8 est entièrement dédié à ce sujet. On y décrit les stratégies d'estimation développées et on les valide sur des expériences tantôt simulées, tantôt réelles.

Les différences entre le nouveau dispositif de type disque chaud et celui du plan chaud se réduisant à l'étendue de la sonde, nous avons mené en parallèle l'étude des deux types de dispositifs. On pourrait penser que ceci était superflu, tellement le dispositif du plan chaud a été étudié. Nous montrons à travers nos résultats que ce n'était pas le cas ; des idées que nous-mêmes avons défendu par le passé (ex. : mesurer en face avant et arrière de l'échantillon) perdent de leur intérêt et des algorithmes d'inversion sophistiqués (moindres carrées non linéaires) laissent la place à des algorithmes simples de recherche de zéros.



## **Chapitre 6: Analyse des méthodes de type sonde plane chauffante – Cas de dispositifs idéaux**

*Ce chapitre est dédié à l'étude des méthodes de type sonde plane chauffante (plan chaud et disque chaud) sur des dispositifs idéaux, où la sonde chauffante est supposée être immatérielle et l'isolation thermique, là où elle existe, est considérée comme étant parfaite. L'ensemble des dispositifs étudiés et des équations gouvernant leur évolution thermique sont présentés dans la section 1. La deuxième section présente la démarche générale de modélisation qui sera adoptée par la suite pour résoudre analytiquement les problèmes de transferts traités. La section 3 est dédiée à l'étude de trois dispositifs de type plan chaud ; tandis que la quatrième section porte sur l'étude de trois dispositifs de type disque chaud. Dans tous les cas, on présente d'abord la solution analytique donnant l'évolution thermique des échantillons soumis à un flux de chaleur constant qui s'applique uniformément sur une des faces (ou sur une partie) de l'échantillon. Ces solutions sont ensuite analysées en vue de la caractérisation thermique des matériaux.*

*Cet exercice académique va nous servir à rendre compte des avantages :*

- de passer des configurations en milieu infini ou semi infini à des configurations en milieu fini ;*
- des dispositifs de type disque/ruban chaud face aux dispositifs de type plan chaud pour la caractérisation de matériaux orthotropes ;*

*Il servira également :*

- à proposer des méthodes simples pour décider « a priori » des dimensions de l'échantillon et des conditions expérimentales (durée de l'expérience et puissance de la sonde) ;*
- à proposer des idées intéressantes vis-à-vis de l'estimation ultérieure des propriétés thermiques de l'échantillon ;*
- à établir les limites intrinsèques des méthodes étudiées.*

## 6.1. Présentation des dispositifs et des équations de conservation de l'énergie

Les dispositifs expérimentaux qui feront l'objet de cette étude sont représentés schématiquement dans les tableaux 6.1 et 6.2. Il s'agit de :

- Une série de dispositifs de type plan chaud qui ne diffèrent entre eux que par l'étendue ou par les conditions aux limites appliquées dans la direction radiale. On trouve ainsi : a) un dispositif à étendue infinie dans la direction  $O\bar{r}$  ; b) un dispositif à  $r = R$  parfaitement isolé de partout ; c) un dispositif à  $r = R$  avec des conditions aux limites mixtes sur  $r = R$  et parfaitement isolé par ailleurs.
- Une série de dispositifs de type disque chaud. Comme précédemment, on distingue : a) un dispositif à étendue infinie dans la direction  $O\bar{r}$  ; b) un dispositif à  $r = R$  parfaitement isolé de partout ; c) un dispositif à  $r = R$  avec des conditions aux limites mixtes sur  $r = R$  et parfaitement isolé par ailleurs.

On notera que la seule différence entre les dispositifs de type plan chaud et les dispositifs de type disque/ruban chaud est l'étendue de la sonde chauffante. Quant au caractère idéal des dispositifs, il tient au fait que : 1) la représentation de la sonde chauffante est réduite à un flux de chaleur imposé sur la surface  $z = 0$  ; 2) l'isolation thermique (là où elle existe) est supposée parfaite. Ces contraintes seront levées au chapitre 7.

L'équation de conservation de l'énergie dans le domaine intérieur ( $0 < z < L$  &  $0 < r < R$ ) des dispositifs ci-dessus est  $\forall t > 0$  :

$$\rho c_p \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial t} = \lambda_r \frac{1}{r^k} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^k \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} \right) + \lambda_z \frac{\partial^2 T(r, z, t)}{\partial z^2} \quad (6.1)$$

où  $T(r, z, t)$  représente la température au point  $(r, z)$  et à l'instant  $t$ .  $\rho$  est la masse volumique de l'échantillon et  $c_p$  sa chaleur massique à pression constante. Les conductivités thermiques de l'échantillon dans les directions  $O\bar{r}$  et  $O\bar{z}$  sont notées, respectivement,  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$ . On suppose que les propriétés thermiques de l'échantillon sont constantes, indépendantes du point et de la température. Seuls des matériaux isotropes ( $\lambda_r = \lambda_z = \lambda$ ) ou orthotropes sont considérés, ces derniers étant placés dans le dispositif de façon à rendre diagonal le tenseur des conductivités thermiques. L'exposant  $k$  dans l'équation (6.1) est  $k = 0$  quand on travaille en coordonnées cartésiennes (échantillon parallélépipédique et sonde rectangulaire) et  $k = 1$  en coordonnées cylindriques (échantillon cylindrique et sonde circulaire). Bien qu'à partir de la section 6.3, nous ne travaillerons qu'en coordonnées cylindriques, nous gardons les deux formulations afin de faciliter le travail au lecteur intéressé par les dispositifs de type ruban chaud.

	<p>Plan chaud semi infini dans la direction <math>O\vec{r}</math></p>
	<p>Plan chaud à dimensions finies (<math>0 \leq r \leq R</math> &amp; <math>0 \leq z \leq L</math>) et isolé thermiquement de partout</p>
	<p>Plan chaud à dimensions finies (<math>0 \leq r \leq R</math> &amp; <math>0 \leq z \leq L</math>) et convection sur <math>r = R</math></p>

Tableau 6.1 : Dispositifs de type plan chaud étudiés.

	<p>Disque chaud semi infini dans la direction <math>O\vec{r}</math></p>
	<p>Disque chaud à dimensions finies (<math>0 \leq r \leq R</math> &amp; <math>0 \leq z \leq L</math>) et isolé thermiquement de partout</p>
	<p>Disque chaud à dimensions finies (<math>0 \leq r \leq R</math> &amp; <math>0 \leq z \leq L</math>) et convection sur <math>r = R</math></p>

Tableau 6.2 : Dispositifs de type disque chaud étudiés.

La différence entre les dispositifs se fait à travers les conditions aux limites. On peut les écrire de manière générale de la façon suivante :

$$\frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} = 0 \quad r = 0 \quad \forall z \quad \forall t > 0 \quad (6.2)$$

$$\lambda_r \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} + hT(r, z, t) = 0 \quad r = R \quad \forall z \quad \forall t > 0 \quad (6.3)$$

$$\frac{\partial T(r, z, t)}{\partial z} = 0 \quad \forall r \quad z = L \quad \forall t > 0 \quad (6.4)$$

$$\lambda_z \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial z} = \varphi(r, t) \quad \forall r \quad z = 0 \quad \forall t > 0 \quad (6.5)$$

avec :

$$\varphi(r, t) = \begin{cases} \varphi \mathcal{H}(t) & 0 \leq r \leq R_o \\ 0 & r > R_o \end{cases} \quad (6.6)$$

où  $\varphi$  représente la densité de flux d'énergie appliquée sur le plan  $z = 0$  de l'échantillon et  $\mathcal{H}(t)$  est la fonction de Heaviside. On peut donc l'exprimer en fonction de la puissance  $P$  injectée par la sonde comme suit :

$$\varphi = \frac{P}{\pi^k R_o^2} \quad (6.7)$$

où  $k = 0$  pour des sondes carrées et  $k = 1$  pour des sondes circulaires.

Pour les dispositifs de type plan chaud,  $R_o = R$ , tandis que pour les dispositifs de type disque/ruban chaud,  $R_o < R$ . On notera que l'équation (6.3) n'a pas lieu d'être pour les dispositifs où  $R \rightarrow \infty$  (semi infinis dans la direction  $O\bar{r}$ ). Pour les dispositifs parfaitement isolés sur  $r = R$ , le coefficient d'échange convectif  $h$  dans l'équation (6.3) est nul.

On précise que la température de l'air autour des dispositifs expérimentaux est supposée constamment nulle. Par ailleurs, on considère que les dispositifs sont initialement en équilibre thermique avec leur environnement et on écrit :

$$T(r, z, t) = 0 \quad \forall r \quad \forall z \quad t = 0 \quad (6.8)$$

On notera que pour des températures non nulles de l'air environnant,  $T(r, z, t)$  représentera la différence entre la température au point  $(r, z)$  de l'échantillon et la température ambiante.

L'analyse ultérieure sera largement simplifiée en appliquant la transformation suivante aux équations (6.1) à (6.7) :

$$r \leftarrow \left( \frac{\lambda}{\lambda_r} \right)^{1/2} r; \quad z \leftarrow \left( \frac{\lambda}{\lambda_z} \right)^{1/2} z; \quad \lambda = \lambda_z^{1/3} \lambda_r^{2/3} \quad (6.9)$$

On obtient alors :

$$\rho c_p \frac{\partial T(r,z,t)}{\partial t} = \lambda \left\{ \frac{1}{r^k} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^k \frac{\partial T(r,z,t)}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 T(r,z,t)}{\partial z^2} \right\} \quad 0 < r < R; \quad 0 < z < L; \quad \forall t > 0 \quad (6.10)$$

avec :

$$\frac{\partial T(r,z,t)}{\partial r} = 0 \quad r = 0 \quad \forall z \quad \forall t > 0 \quad (6.11)$$

$$\lambda \frac{\partial T(r,z,t)}{\partial r} + hT(r,z,t) = 0 \quad r = R \quad \forall z \quad \forall t > 0 \quad (6.12)$$

$$\frac{\partial T(r,z,t)}{\partial z} = 0 \quad \forall r \quad z = L \quad \forall t > 0 \quad (6.13)$$

$$\lambda \frac{\partial T(r,z,t)}{\partial z} = \varphi(r,t) \quad \forall r \quad z = 0 \quad \forall t > 0 \quad (6.14)$$

et

$$h \leftarrow \left( \frac{\lambda}{\lambda_r} \right)^{1/2} h \quad (6.15)$$

On voit donc, qu'après transformation, les équations de transferts en milieu orthotrope rejoignent celles des transferts en milieu isotrope. Nous utiliserons par la suite cette formulation, sachant que dans le cas des milieux orthotropes les variables spatiales ont subi la transformation définie par les équations (6.9). Ainsi, les dimensions du dispositif intervenant dans les équations (6.10) à (6.14) seront :

$$R \leftarrow \left( \frac{\lambda}{\lambda_r} \right)^{1/2} R; \quad R_o \leftarrow \left( \frac{\lambda}{\lambda_r} \right)^{1/2} R_o; \quad L \leftarrow \left( \frac{\lambda}{\lambda_z} \right)^{1/2} L; \quad (6.16)$$

sans oublier la signification nouvelle de  $\lambda = \lambda_z^{1/3} \lambda_r^{2/3}$  et celle de  $h \leftarrow (\lambda / \lambda_r)^{1/2} h$ . Pour les détails concernant la transformation (6.9), ainsi que pour d'autres transformations similaires, on peut se reporter aux travaux de Chao [93].

## 6.2. Démarche générale de résolution des équations de conservation

En absence de source de chaleur, avec des conditions initiales nulles et des conditions aux limites homogènes sur  $r = 0$ ,  $r = R$  et  $z = L$ , la solution générale de l'équation (6.10) de conservation de l'énergie peut s'écrire sous la forme intégrale (cf. [94]) :

$$T(r,z,t) = \alpha \int_{\tau=0}^t d\tau \int_{r'=0}^R r'^k G(r,z,t/r',z',\tau) \Big|_{z'=0} f(r',\tau) dr' \quad (6.17)$$

avec  $\alpha = (\lambda / \rho c_p)$  (il s'agit de la diffusivité thermique dans le cas d'un milieu isotrope) et  $f(r,t) = \varphi(r,t) / \lambda$ . Nous rappelons que  $k = 0$  en coordonnées cartésiennes et  $k = 1$  en cylindriques.

Le noyau  $G(r,z,t/r',z',\tau)$  représente la fonction de Green associée au jeu d'équations (6.10) à (6.14). Nous rappelons qu'elle définit la réponse thermique du système, avec des conditions

aux limites homogènes de partout ( $\varphi=0$  dans notre cas), quand on lui applique une source ponctuelle et impulsionnelle de chaleur :

$$\rho c_p \frac{\partial G(r, z, t / r', z', \tau)}{\partial t} = \lambda \nabla^2 G(r, z, t / r', z', \tau) + \delta(r - r') \delta(z - z') \delta(t - \tau)$$

*sur*  $0 < r < R, 0 < z < L$

$$\text{avec : } \begin{cases} \left. \frac{\partial G}{\partial r} \right|_{r=0} = 0 & \left. \lambda \frac{\partial G}{\partial r} + hG(r, z, t) \right|_{r=R} = 0 \\ \left. \frac{\partial G}{\partial z} \right|_{z=L} = 0 & \left. \frac{\partial G}{\partial z} \right|_{z=0} = 0 \end{cases} \quad (6.18)$$

où l'opérateur de Laplace  $\nabla^2$  a la même forme que dans l'équation (6.10).

De part la nature homogène du problème (6.18), la fonction de Green peut s'écrire :

$$G(r, z, t / r', z', \tau) = \psi(r, t / r', \tau) \phi(z, t / z', \tau)$$

où  $\psi(r, t / r', \tau)$  et  $\phi(z, t / z', \tau)$  sont à leur tour les fonctions de Green des problèmes monodimensionnels :

$$\begin{cases} \rho c_p \frac{\partial T(r, t)}{\partial t} = \frac{\lambda}{r^k} \frac{\partial}{\partial r} \left\{ r^k \frac{\partial T(r, t)}{\partial r} \right\} & \text{sur } 0 < r < R \\ \text{avec : } \left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_{r=0} = 0 & \left. \lambda \frac{\partial T}{\partial r} + hT(r, z, t) \right|_{r=R} = 0 \end{cases} \quad (6.19)$$

et

$$\begin{cases} \rho c_p \frac{\partial T(r, t)}{\partial t} = \lambda \frac{\partial^2 T(r, t)}{\partial r^2} & \text{sur } 0 < z < L \\ \text{avec : } \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{z=0} = f(t) & \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{z=L} = 0 \end{cases} \quad (6.20)$$

respectivement. Par ailleurs, on peut démontrer que (cf. [94]) :

$$\psi(r, t / r', \tau) = \sum_{m=1}^{\infty} e^{-\alpha \beta_m^2 (t-\tau)} \frac{1}{N(\beta_m)} \psi(\beta_m, r) \psi(\beta_m, r') \quad (6.21)$$

et

$$\phi(z, t / z', \tau) = \sum_{p=1}^{\infty} e^{-\alpha \eta_p^2 (t-\tau)} \frac{1}{N(\eta_p)} \phi(\eta_p, z) \phi(\eta_p, z') \quad (6.22)$$

où  $\beta_m$  et  $\eta_p$  sont respectivement les valeurs propres associés aux problèmes de transferts (6.19) et (6.20), et  $\psi(\beta_m, r) / \sqrt{N(\beta_m)}$  et  $\phi(\eta_p, z) / \sqrt{N(\eta_p)}$  les fonctions propres correspondantes.

Pour tous les dispositifs expérimentaux étudiés on a :

$$\phi(\eta_p, z) = \cos(\eta_p z) \quad \frac{1}{N(\eta_p)} = \frac{2}{L} \left( \frac{1}{L} \text{ pour } \eta_o = 0 \right) \quad \eta_p = \frac{p\pi}{L} \quad (6.23)$$

car les conditions aux limites sur  $z=0$  et  $z=L$  sont de même nature (2<sup>ème</sup> classe).

Pour les dispositifs à dimension finie sur la direction  $O\bar{r}$ , on aura :

Coordonnées & $h$	$\psi(\beta_m, r)$	$1/N(\beta_m)$	$\beta_m$ racines positives de
cartésiennes $h > 0$	$\cos(\beta_m r)$	$2 \frac{\beta_m^2 + (h/\lambda)^2}{R(\beta_m^2 + (h/\lambda)^2) + (h/\lambda)}$	$\beta_m \tan(\beta_m R) = (h/\lambda)$
cartésiennes $h = 0$	$\cos(\beta_m r)$	$\frac{2}{R} \left( \frac{1}{R} \text{ pour } \beta_o = 0 \right)$	$\sin(\beta_m R) = 0$
cylindriques $h > 0$	$J_o(\beta_m r)$	$\frac{2}{J_o^2(\beta_m R) R^2 (\beta_m^2 + (h/\lambda)^2)}$	$\beta_m J_o'(\beta_m R) + (h/\lambda) J_o(\beta_m R) = 0$
cylindriques $h = 0$	$J_o(\beta_m r)$	$\frac{2}{R^2 J_o^2(\beta_m R)}$	$J_o'(\beta_m R) = 0$

$J_o$  désigne la fonction de Bessel de première classe et d'ordre 0, dont la dérivée est :

$$J_o'(\beta_m R) = dJ_o(r)/dr|_{r=\beta_m R} = -J_1(\beta_m R)$$

On notera que pour les dispositifs isolés latéralement,  $\beta_o = 0$  fait partie des valeurs propres.

Contrairement aux problèmes en dimension finie, dont les valeurs propres sont en nombre infini mais dénombrable, les transferts dans des milieux infinis ou semi-infinis présentent un spectre continu de valeurs propres. Pour les dispositifs semi infinis sur  $O\bar{r}$  (avec des conditions aux limites de 2<sup>ème</sup> classe sur  $r = 0$ ), la fonction de Green  $\psi(r, t)$  est (cf. [94]) :

a) en coordonnées cylindriques

$$\psi(r, t/r', \tau) = (2\alpha(t - \tau))^{-1/2} \exp\left(-\frac{r^2 + r'^2}{4\alpha(t - \tau)}\right) I_o\left(\frac{rr'}{2\alpha(t - \tau)}\right) \quad (6.24)$$

b) en coordonnées cartésiennes

$$\psi(r, t/r', \tau) = (4\pi\alpha(t - \tau))^{-1/2} \left[ \exp\left(-\frac{(r - r')^2}{4\alpha(t - \tau)}\right) + \exp\left(-\frac{(r + r')^2}{4\alpha(t - \tau)}\right) \right] \quad (6.25)$$

où  $I_o$  est la fonction modifiée de Bessel de première classe et d'ordre 0.

### 6.3. Analyse des dispositifs de type plan chaud

On explicite ici les solutions des équations (6.1) à (6.14) pour les dispositifs expérimentaux de type plan chaud (voir tableau 6.1) et on analyse les résultats dans une optique de caractérisation thermique de matériaux.

#### 6.3.1. Plan chaud à $0 \leq z \leq L$ & $0 \leq r < \infty$

Il s'agit d'un dispositif à transferts monodimensionnels (direction  $O\bar{z}$ ) où seules les propriétés de transferts dans cette direction seront donc perceptibles. On note  $\lambda_z$  et  $\alpha_z$  la conductivité thermique et la diffusivité thermique de l'échantillon dans la direction  $O\bar{z}$ . La fonction de Green correspondante (voir équations (6.22) et (6.23)) est :

$$\phi(z, t / z', \tau) = \frac{2}{L} \sum_{p=1}^{\infty} e^{-\alpha_z \eta_p^2 (t-\tau)} \cos(\eta_p z) \cos(\eta_p z') + \frac{1}{L} \quad (6.26)$$

La réponse thermique de l'échantillon en tout point et tout instant est donc :

$$T(z, t) \equiv \frac{\alpha_z \varphi}{\lambda_z} \int_{\tau=0}^t \phi(z, t / z' = 0, \tau) d\tau = \frac{2\varphi}{L\lambda_z} \sum_{p=1}^{\infty} \left( \frac{\cos(\eta_p z)}{\eta_p^2} \right) \left( 1 - e^{-\alpha_z \eta_p^2 t} \right) + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t \quad (6.27)$$

Pour des temps suffisamment longs, les termes exponentiels de l'équation (6.27) deviennent négligeables (s'annulent à  $t \rightarrow \infty$ ) et l'échantillon suit une loi linéaire d'évolution en tout point :

$$T_{t \rightarrow \infty}(z, t) = \frac{2\varphi}{L\lambda_z} \sum_{p=1}^{\infty} \left( \frac{\cos(\eta_p z)}{\eta_p^2} \right) + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t \quad (6.28)$$

Dans la littérature (cf. [95]), on établit la limite entre temps courts et temps long à  $t \approx 3L^2 / \pi^2 \alpha_z$ .

Nous allons nous attarder sur la réponse thermique de l'échantillon aux points  $z = 0$  et  $z = L$ , correspondant respectivement aux faces avant et arrière de l'échantillon. Sachant que :

$$\eta_p = p\pi / L, \quad \sum_{p=1,2,\dots} 1/(p\pi)^2 = 1/6 \quad \text{et} \quad \sum_{p=1,2,\dots} (-1)^p / (p\pi)^2 = -1/12$$

il est aisé de vérifier que :

$$T(0, t) = \frac{2\varphi}{L\lambda_z} \sum_{p=1}^{\infty} \left( \frac{1 - e^{-\alpha_z \eta_p^2 t}}{\eta_p^2} \right) + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t \quad T(L, t) = \frac{2\varphi}{L\lambda_z} \sum_{p=1}^{\infty} (-1)^p \left( \frac{1 - e^{-\alpha_z \eta_p^2 t}}{\eta_p^2} \right) + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t \quad (6.29)$$

et

$$T_{t \rightarrow \infty}(0, t) = \frac{1}{3} \frac{\varphi L}{\lambda_z} + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t \quad T_{t \rightarrow \infty}(L, t) = -\frac{1}{6} \frac{\varphi L}{\lambda_z} + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t \quad (6.30)$$

Les équations (6.30) montrent que :

- Rendre fini le dispositif « plan chaud » dans la direction  $Oz$  permet d'accéder aux valeurs de conductivité thermique ( $\lambda = \lambda_z$ ) et de capacité thermique ( $\rho c_p$ ) de l'échantillon à partir de l'observation de sa réponse thermique en face avant ou en face arrière ; contrairement à la méthode originelle qui ne donne accès qu'à la diffusivité thermique.
- L'estimation des propriétés thermiques peut se faire aux temps longs par une simple régression linéaire donnant la constante ( $\varphi L / 3\lambda_z$  ou  $-\varphi L / 6\lambda_z$ ) et la pente ( $\varphi / L\rho c_p$ ) des droites (6.30). Connaissant  $\varphi$  et  $L$ , on obtiendrait alors  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$ . Nous verrons aux chapitres suivants que l'observation en face arrière peut s'avérer plus intéressante que l'observation en face avant, car elle permet de s'affranchir du problème de résistances de contacts inconnues entre la sonde et l'échantillon. On verra également que l'estimation aux temps longs rend négligeable l'effet de l'inertie thermique de la sonde sur les estimations.

- Si la densité de flux  $\varphi$  est inconnue, on pourra toujours estimer la diffusivité thermique de l'échantillon en faisant le rapport entre la pente et la constante des droites de régression ci-dessus ( $3\alpha_z / L^2$  ou  $-6\alpha_z / L^2$ ).
- La différence de température entre les faces avant et arrière de l'échantillon ( $\varphi L / 2\lambda_z$ ) est constante et ne dépend que de la conductivité thermique. Ceci pourrait devenir une propriété intéressante vis-à-vis de l'estimation des propriétés thermiques à partir d'expériences réelles (voir chapitres suivants).

Enfin, ces mêmes équations suggèrent une méthode simple pour guider le choix « a priori » des conditions expérimentales requises pour l'estimation ultérieure des propriétés thermiques. On peut, par exemple, fixer en fonction des critères de type signal sur bruit :

- la valeur de la température en face arrière en fin d'expérience,  $T_L^*$  ;
- la valeur de  $\beta^*$  la pente des équations (6.30) ;
- et la valeur  $\Delta T^*$  de la différence de température face avant/face arrière aux temps longs.

On obtient ainsi un système à trois équations et trois inconnues permettant de déterminer (pourvu que  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$  soient connues en ordre de grandeur) les valeurs de  $L$ ,  $\varphi$  et  $t_f$  :

$$\left. \begin{aligned} -\frac{\varphi L}{6\lambda_z} + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t_f &= T_L^* \\ \frac{\varphi}{\rho c_p L} &= \beta^* \\ \frac{\varphi L}{2\lambda_z} &= \Delta T^* \end{aligned} \right\} \Rightarrow \left\{ \begin{aligned} t_f &= \frac{T_L^* + (\Delta T^* / 3)}{\beta^*} \\ L^2 &= \frac{2\alpha_z \Delta T^*}{\beta^*} \\ \varphi &= \rho c_p L \beta^* \end{aligned} \right. \quad (6.31)$$

On pourrait également fixer le trinôme  $(T_L^*, \Delta T^*, t_f)$  et calculer  $L$  et  $\varphi$  ; ou encore, fixer  $(T_L^*, \Delta T^*, \varphi)$  et déterminer  $L$  et  $t_f$ .

### 6.3.2. Plan chaud à $0 \leq z \leq L$ & $0 \leq r \leq R$ et isolation latérale parfaite

Le deuxième dispositif dans le tableau 6.1 n'est qu'un premier pas vers la réalisation matérielle du premier dispositif, dans le sens où l'étendue sur  $O\bar{r}$  devient finie. On considère donc un échantillon de dimensions finies isolé parfaitement de partout et dont les propriétés thermiques sont notées  $\lambda_r$ ,  $\lambda_z$  et  $\rho c_p$ . Nous travaillerons en coordonnées cylindriques sachant que le choix du système de référence ne changera en rien l'essentiel des conclusions. Le milieu étant orthotrope, nous utiliserons la transformation définie par les équations (6.9) afin de faciliter la résolution des équations de conservation. Nous appelons respectivement « variables naturelles » et « variables transformées » les variables du problème avant et après transformation.

En « variables transformées », les fonctions de Green monodimensionnelles  $\psi(r, t / r', \tau)$  et  $\phi(z, t / z', \tau)$  associées au dispositif sont :

$$\psi(r, t / r', \tau) = \frac{2}{R^2} \sum_{m=1}^{\infty} e^{-\alpha \beta_m^2 (t-\tau)} \frac{J_o(\beta_m r) J_o(\beta_m r')}{J_o^2(\beta_m R)} + \frac{2}{R^2} \quad (6.32)$$

$$\phi(z, t / z', \tau) = \frac{2}{L} \sum_{p=1}^{\infty} e^{-\alpha \eta_p^2 (t-\tau)} \cos(\eta_p z) \cos(\eta_p z') + \frac{1}{L} \quad (6.33)$$

avec  $\eta_p = p\pi / L$  et  $J_1(\beta_m R) = 0$ .

Sachant que la densité de flux appliquée sur  $z=0$  est constante et uniforme sur  $0 \leq r \leq R$  (donc  $f(r, t) = \varphi / \lambda$ ), l'équation (6.17) s'écrit :

$$T(r, z, t) = \frac{\alpha \varphi}{\lambda} \int_{\tau=0}^t \phi(z, t / 0, \tau) \left\{ \int_{r'=0}^R r' \psi(r, t / r', \tau) dr' \right\} d\tau \quad (6.34)$$

Compte tenu de (6.32), on peut montrer aisément que<sup>‡</sup> :

$$\int_{r'=0}^R r' \psi(r, t / r', \tau) dr' = 1 \quad (6.35)$$

En reportant l'équation (6.35), ainsi que l'expression de  $\phi(z, t / 0, \tau)$ , dans (6.34) et en intégrant par rapport au temps, on obtient :

$$T(r, z, t) = \frac{2\varphi}{L\lambda} \sum_{p=1}^{\infty} \frac{\cos(\eta_p z)}{\eta_p^2} \left( 1 - e^{-\alpha \eta_p^2 t} \right) + \frac{\varphi}{L\rho c_p} t \quad (6.36)$$

qui devient aux temps longs :

$$T_{t \rightarrow \infty}(r, z, t) = \frac{2\varphi}{L\lambda} \sum_{p=1}^{\infty} \frac{\cos(\eta_p z)}{\eta_p^2} + \frac{\varphi}{L\rho c_p} t \quad (6.37)$$

Pour obtenir la solution du problème en « variables naturelles », nous défaisons la transformation (6.9) dans les équations (6.36) et (6.37). Ceci implique les remplacements suivants :

$$\begin{aligned} z &\rightarrow \left( \frac{\lambda}{\lambda_z} \right)^{1/2} z; & L &\rightarrow \left( \frac{\lambda}{\lambda_z} \right)^{1/2} L; & R &\rightarrow \left( \frac{\lambda}{\lambda_r} \right)^{1/2} R; & \varphi &\rightarrow \left( \frac{\lambda_r}{\lambda} \right) \varphi \\ \eta_p^2 &\rightarrow \left( \frac{\lambda_z}{\lambda} \right) \eta_p^2; & \alpha \eta_p^2 &\rightarrow \alpha_z \eta_p^2; & \frac{\cos(\eta_p z)}{\eta_p^2} &\rightarrow \left( \frac{\lambda_z}{\lambda} \right) \frac{\cos(\eta_p z)}{\eta_p^2}; \end{aligned} \quad (6.38)$$

On obtient :

$$T(r, z, t) = \frac{2\varphi}{L\lambda_z} \sum_{p=1}^{\infty} \frac{\cos(\eta_p z)}{\eta_p^2} \left( 1 - e^{-\alpha_z \eta_p^2 t} \right) + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t \quad (6.39)$$

<sup>‡</sup> Pour cette intégration, il faut tenir compte du fait que :

$$\int_{r'=0}^R r' J_o(\beta_m r') dr' = \left[ \frac{1}{\beta_m} r' J_1(\beta_m r') \right]_0^R = \frac{R J_1(\beta_m R)}{\beta_m} \text{ et donc } \int_{r'=0}^R r' J_o(\beta_m r') dr' = 0$$

car  $J_1(\beta_m R) = 0$  (équation de définition des valeurs propres).

$$T_{t \rightarrow \infty}(r, z, t) = \frac{2\varphi}{L\lambda_z} \left( \sum_{p=1}^{\infty} \frac{\cos(\eta_p z)}{\eta_p^2} \right) + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t \quad (6.40)$$

On constate que la réponse thermique du deuxième dispositif est identique à celle du premier, les gradients thermiques dans la direction  $O\bar{r}$  étant nuls. En termes de caractérisation thermique (estimation des paramètres  $\lambda_z$  et  $\rho c_p$ ), les remarques et les commentaires réalisés dans la section précédente restent donc d'actualité.

### 6.3.3. Plan chaud à $0 \leq z \leq L$ & $0 \leq r \leq R$ et des conditions aux limites de type mixte sur $r = R$

Le troisième dispositif ne diffère du précédent que par les conditions aux limites appliquées sur  $r = R$  et nous rapproche encore plus des dispositifs réels. On passe d'un échantillon fini parfaitement isolé de partout, à un échantillon qui échange par convection de l'énergie thermique avec son environnement. Dans le modèle de transferts correspondant apparaissent alors les propriétés thermiques de l'échantillon ( $\lambda_r$ ,  $\lambda_z$  et  $\rho c_p$ ) et le paramètre  $h$  décrivant la convection sur  $r = R$ .

Deux options de travail/développement paraissent possibles :

- Profiter de la convection sur  $r = R$  pour créer un gradient thermique significatif dans la direction  $O\bar{r}$ . Ceci aurait l'avantage potentiel de rendre visible  $\lambda_r$ . Par contre, nous nous trouverions avec une nouvelle inconnue  $h$  dont l'estimation est toujours délicate et avec 4 paramètres au total à identifier.
- Dimensionner le dispositif pour rendre son évolution thermique aux points d'observation (centre face avant et centre face arrière) insensible à la valeur de  $h$ . On renonce ainsi à l'estimation simultanée de  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$ , mais on limite le nombre d'inconnues.

C'est la deuxième option que nous avons retenu et nous montrons plus tard (section 6.3.4) la pertinence de ce choix. Nous allons donc étudier la solution analytique des équations (6.10) à (6.14) dans le but de dimensionner correctement l'échantillon.

Les fonctions de Green monodimensionnelles  $\psi(r, t/r', \tau)$  et  $\phi(z, t/z', \tau)$  associées au dispositif sont :

$$\psi(r, t/r', \tau) = \sum_{m=0}^{\infty} e^{-\alpha\beta_m^2(t-\tau)} \frac{2}{R^2 J_o^2(\beta_m R)} \frac{\beta_m^2}{\beta_m^2 + H^2} J_o(\beta_m r) J_o(\beta_m r') \quad (6.41)$$

$$\phi(z, t/z', \tau) = \frac{2}{L} \sum_{p=1}^{\infty} e^{-\alpha\eta_p^2(t-\tau)} \cos(\eta_p z) \cos(\eta_p z') + \frac{1}{L} \quad (6.42)$$

avec  $H = h/\lambda$ ,  $\eta_p = p\pi/L$  et  $-\beta_m J_1(\beta_m R) + H J_o(\beta_m R) = 0$ . On notera que cette fois-ci le zéro n'est pas une valeur propre du problème de transferts dans la direction  $O\bar{r}$  ( $\beta_o \neq 0$ ).

Comme préalablement, la densité de flux appliquée sur  $z = 0$  est constante et uniforme sur  $0 \leq r \leq R$  (donc  $f(r, t) = \varphi/\lambda$ ). L'équation (6.17) s'écrit alors :

$$T(r, z, t) = \frac{\alpha\varphi}{\lambda} \int_{\tau=0}^t \phi(z, t/0, \tau) \left\{ \int_{r'=0}^R r' \psi(r, t/r', \tau) dr' \right\} d\tau \quad (6.43)$$

Compte tenu de (6.41), on peut montrer aisément que<sup>§</sup> :

$$\int_{r'=0}^R r' \psi(r, t/r', \tau) dr' = 2 \left( \frac{H}{R} \right) \sum_{m=1}^{\infty} \frac{J_o(\beta_m r)}{(\beta_m^2 + H^2) J_o(\beta_m R)} e^{-\alpha\beta_m^2(t-\tau)} \quad (6.44)$$

En reportant l'équation (6.44), ainsi que l'expression de  $\phi(z, t/0, \tau)$ , dans (6.43) et en intégrant par rapport au temps, on obtient :

$$T(r, z, t) = \frac{2\varphi H}{\lambda L R} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{J_o(\beta_m r)}{\beta_m^2 (\beta_m^2 + H^2) J_o(\beta_m R)} \left( 1 - e^{-\alpha\beta_m^2 t} \right) + \frac{4\varphi H}{\lambda L R} \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \frac{J_o(\beta_m r) \cos(\eta_p z)}{(\beta_m^2 + \eta_p^2) (\beta_m^2 + H^2) J_o(\beta_m R)} \left( 1 - e^{-\alpha(\beta_m^2 + \eta_p^2)t} \right) \quad (6.45)$$

L'évolution thermique de l'échantillon sur son axe de symétrie ( $r = 0$ ) est donc :

$$T(0, z, t) = \frac{2\varphi H}{\lambda L R} \left\{ \sum_{m=1}^{\infty} \frac{1 - e^{-\alpha\beta_m^2 t}}{\beta_m^2 (\beta_m^2 + H^2) J_o(\beta_m R)} + \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \frac{2 \left( 1 - e^{-\alpha(\beta_m^2 + \eta_p^2)t} \right) \cos(\eta_p z)}{(\beta_m^2 + \eta_p^2) (\beta_m^2 + H^2) J_o(\beta_m R)} \right\} \quad (6.46)$$

A partir de l'équation (6.45), on peut également déterminer le flux d'énergie échangé par convection entre le dispositif et son environnement :

$$Q(t) \equiv -2\pi R \lambda \int_{z=0}^L \frac{dT(r, z, t)}{dz} \Big|_{r=R} dz = 4\pi\varphi \sum_{m=1}^{\infty} \frac{H^2}{(\beta_m^2 + H^2)} \frac{1 - e^{-\alpha\beta_m^2 t}}{\beta_m^2} \quad (6.47)$$

Supposant  $\lambda$  et  $\alpha$  connues et  $\varphi$  et  $L$  fixés, il s'agit maintenant de déterminer les valeurs de  $R$  qui rendent  $T(0, z, t)$  insensible à la convection latérale. Autrement dit, on cherche la valeur minimale de  $R$  qui permet d'approcher l'équation (6.46) par :

$$T(0, z, t) = \frac{\varphi}{L\rho c_p} t + \frac{2\varphi}{L\lambda} \sum_{p=1}^{\infty} \frac{\cos(\eta_p z)}{\eta_p^2} \left( 1 - e^{-\alpha\eta_p^2 t} \right) \quad (6.48)$$

qui est la réponse thermique sur  $r = 0$  du même échantillon isolé parfaitement de partout (dispositif précédent).

Pour ce faire, nous allons tout d'abord examiner les conditions requises pour que les fonctions de Green des deux problèmes se ressemblent. Ceci revient à comparer les fonctions  $\psi(r, t/r', \tau)$  issues des deux problèmes. Nous rappelons que les valeurs propres des deux problèmes sont les racines positives des équations :

<sup>§</sup> Pour cette intégration, il faut tenir compte du fait que :

$$\int_{r'=0}^R r' J_o(\beta_m r') dr' = \left[ \frac{1}{\beta_m} r' J_1(\beta_m r') \right]_0^R = \frac{R J_1(\beta_m R)}{\beta_m} \text{ et donc } \int_{r'=0}^R r' J_o(\beta_m r') dr' = \frac{RH}{\beta_m^2} J_o(\beta_m R)$$

car  $-\beta_m J_1(\beta_m R) + H J_o(\beta_m R) = 0$  (équation de définition des valeurs propres).

$$-(\beta_m R)J_1(\beta_m R) + (HR)J_0(\beta_m R) = 0 \quad (\text{avec pertes latérales}) \quad (6.49)$$

et

$$J_1(\beta_m R) = 0 \quad (\text{sans pertes latérales}) \quad (6.50)$$

Par la suite, on notera  $Bi \equiv (HR) = (hR/\lambda)$  (nombre de Biot) et  $\kappa_m \equiv (\beta_m R)$ , avec  $\kappa_m'$  pour désigner les racines de l'équation (6.50).

Le tableau 6.3 contient les six premières racines de l'équation (6.49) pour différentes valeurs de  $Bi$ . On notera que la première ligne, avec  $Bi = 0$ , donne les racines  $\kappa_m'$  de l'équation (6.50). Dans la figure 6.1, nous avons représenté les différences  $\kappa_m - \kappa_m'$  ( $m = 1 \dots 5$ ) face à la valeur de  $\kappa_0$ . Enfin, la figure 6.2 permet de comparer les fonctions de Bessel  $J_0$  et  $J_1$  à leurs approximations (cf. [96]) :

$$z \rightarrow 0 \quad J_\nu(z) \sim (z/2)^\nu / \Gamma(\nu+1) \quad (6.51)$$

où  $\Gamma$  est la fonction Gamma. Nous rappelons que  $\Gamma(1) = \Gamma(2) = 1$ .

$Bi$	$\kappa_0$	$\kappa_1$	$\kappa_2$	$\kappa_3$	$\kappa_4$	$\kappa_5$
0.0000	0.0000	3.8317	7.0156	10.1735	13.3237	16.4706
0.0100	0.1412	3.8343	7.0170	10.1745	13.3244	16.4712
0.0200	0.1995	3.8369	7.0184	10.1754	13.3252	16.4718
0.0400	0.2814	3.8421	7.0213	10.1774	13.3267	16.4731
0.0600	0.3438	3.8473	7.0241	10.1794	13.3282	16.4743
0.0800	0.3960	3.8525	7.0270	10.1813	13.3297	16.4755
0.1000	0.4417	3.8577	7.0298	10.1833	13.3312	16.4767
0.1500	0.5376	3.8706	7.0369	10.1882	13.3349	16.4797
0.2000	0.6170	3.8835	7.0440	10.1931	13.3387	16.4828
0.3000	0.7465	3.9091	7.0582	10.2029	13.3462	16.4888

Tableau 6.3 : Racines positives de l'équation (6.49) pour différentes valeurs du nombre de Biot

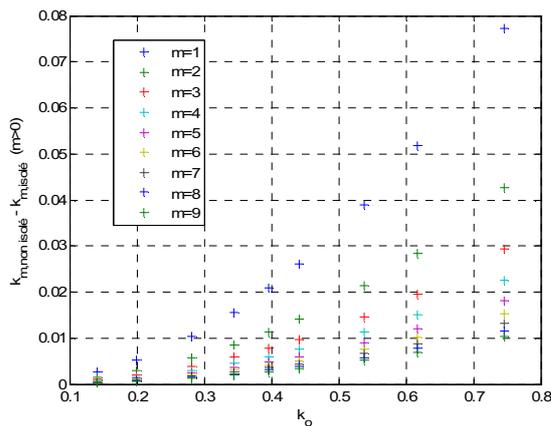


Figure 6.1 : Différences  $\kappa_m - \kappa_m'$  face à  $\kappa_0$ .

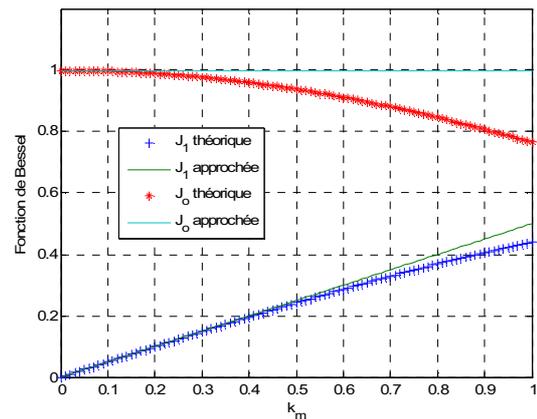


Figure 6.2 : Comparaisons des approximations (6.51) aux des fonctions de Bessel  $J_0$  et  $J_1$ .

De l'analyse de ces informations, on retiendra les remarques suivantes :

**R1)** Pour des valeurs de  $Bi \leq 0.3$  et  $m > 0$ , les différences  $\kappa_m - \kappa_m'$  entre les valeurs des racines de l'équation (6.49) et celles de l'équation (6.50) ne sont pas significatives (voir tableau 6.3). Au delà de la première valeur propre ( $\beta_o = 0$  dans le dispositif isolé), le spectre des valeurs propres du problème de transferts thermiques dans le dispositif non isolé latéralement ne diffère significativement de celui du problème isolé.

**R2)** On peut tourner la remarque précédente de façon plus intéressante en disant que pour des valeurs de  $\kappa_o < 0.6$ , les différences  $\kappa_m - \kappa_m'$  sont négligeables pour tout  $m > 0$ . Par ailleurs, on constate que ces différences sont d'autant plus petites que  $m$  est grand et  $\kappa_o$  réduit (voir figure 6.1).

**R3)**  $\forall m > 0 \quad Bi^2 \ll \kappa_m^2$  (voir tableau 6.3).

**R4)** Pour des valeurs de  $\kappa_m \leq 0.6$ , la fonction  $J_1(\kappa_m)$  de Bessel peut s'approcher par  $J_1(\kappa_m) \approx \kappa_m / 2$  (voir figure 6.2).

**R5)** Pour des valeurs de  $\kappa_m \leq 0.3$ , on peut supposer  $J_o(\kappa_m) \approx 1$  (voir figure 6.2).

**R6)** Par ailleurs, nous rappelons l'approximation  $\exp(-x) \approx 1 - x$  pour  $x \leq 0.12$ .

Les remarques R2 et R3 sont particulièrement importantes. Elles indiquent que pour un choix pertinent de  $\kappa_o$  (ex. :  $\kappa_o < 0.6$ ), on pourra remplacer l'équation (6.49) par :

$$\begin{cases} -(\beta_m R)J_1(\beta_m R) + (HR)J_o(\beta_m R) = 0 & m = 0 \\ J_1(\beta_m R) = 0 & m > 0 \end{cases} \quad (6.52)$$

et supposer que :

$$\forall m > 0 \quad \beta_m^2 + H^2 \approx \beta_m^2 \quad (6.53)$$

La fonction de Green  $\psi(r, t / r', \tau)$  s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \psi(r, t / r', \tau) \approx & \frac{2}{R^2 J_o^2(\beta_o R)} \frac{\beta_o^2}{\beta_o^2 + H^2} J_o(\beta_o r) J_o(\beta_o r') e^{-\alpha \beta_o^2 (t - \tau)} \\ & + \sum_{m=1}^{\infty} \frac{2}{R^2 J_o^2(\beta_m R)} J_o(\beta_m r) J_o(\beta_m r') e^{-\alpha \beta_m^2 (t - \tau)} \end{aligned} \quad (6.54)$$

Ceci indique que la convection ne se fera sentir qu'aux temps longs, car elle est représentée au travers de la plus petite valeur propre et donc de la constante de temps la plus longue.

En reportant l'expression (6.54) dans l'équation (6.43) et en intégrant, on obtient :

$$\begin{aligned} T(r, z, t) \approx & \frac{2\varphi}{\lambda LR} \frac{H}{\beta_o^2 (\beta_o^2 + H^2)} \frac{J_o(\beta_o r)}{J_o(\beta_o R)} \left( 1 - e^{-\alpha \beta_o^2 t} \right) \\ & + \frac{4\varphi}{\lambda LR} \sum_{p=1}^{\infty} \frac{H}{(\beta_o^2 + \eta_p^2) (\beta_o^2 + H^2)} \frac{J_o(\beta_o r) \cos(\eta_p z)}{J_o(\beta_o R)} \left( 1 - e^{-\alpha (\beta_o^2 + \eta_p^2) t} \right) \end{aligned} \quad (6.55)$$

Donc :

$$T(0, z, t) \approx \frac{2\varphi}{\lambda LR} \frac{H}{\beta_o^2(\beta_o^2 + H^2)} \frac{1}{J_o(\beta_o R)} \left(1 - e^{-\alpha\beta_o^2 t}\right) + \frac{4\varphi}{\lambda LR} \sum_{p=1}^{\infty} \frac{H}{(\beta_o^2 + \eta_p^2)(\beta_o^2 + H^2)} \frac{\cos(\eta_p z)}{J_o(\beta_o R)} \left(1 - e^{-\alpha(\beta_o^2 + \eta_p^2)t}\right) \quad (6.56)$$

et

$$Q(t) \approx 4\pi\varphi \frac{H^2}{(\beta_o^2 + H^2)} \frac{1 - e^{-\alpha\beta_o^2 t}}{\beta_o^2} \quad (6.57)$$

On notera que pour  $t \rightarrow \infty$ ,  $Q(t \rightarrow \infty) = P$  (régime stationnaire). On trouve ainsi, à partir de l'équation (6.57) \*\* :

$$4\pi\varphi \frac{H^2}{(\beta_o^2 + H^2)} \frac{1}{\beta_o^2} = P \Rightarrow \frac{H^2}{(\beta_o^2 + H^2)} \frac{1}{\beta_o^2} = \frac{R^2}{4} \quad (6.58)$$

Compte tenu des remarques R6 et R4, si l'on suppose  $\alpha\beta_o^2 t_f < 0.12$  ( $t_f$  = durée de l'expérience) et  $\beta_o R < 0.6$ , on pourra écrire :

$$\exp(-\alpha\beta_o^2 t) \approx 1 - \alpha\beta_o^2 t \quad J_o(\beta_o R) = \frac{\beta_o}{H} J_1(\beta_o R) \approx \frac{\beta_o^2 R}{2H} \quad (6.59)$$

En tenant compte de l'équation (6.58) et des expressions ci-dessus, l'évolution thermique de l'échantillon sur son axe de symétrie (équation (6.56)) devient :

$$T(0, z, t) = \frac{\varphi}{L\rho c_p} t + \frac{2\varphi}{L\lambda} \sum_{p=1}^{\infty} \frac{\cos(\eta_p z)}{(\beta_o^2 + \eta_p^2)} \left(1 - e^{-\alpha(\beta_o^2 + \eta_p^2)t}\right) \quad (6.60)$$

Il suffirait que  $\beta_o^2 \ll \eta_1^2$  pour retrouver l'évolution correspondant au dispositif avec isolation latérale parfaite (équation (6.48)).

En résumé, pour rendre le dispositif étudié insensible (au moins sur  $r = 0$ ) aux échanges convectifs latéraux, il faut satisfaire simultanément les contraintes suivantes :

n°1	$\kappa_o = \beta_o R < 0.6$	Pour assurer la convergence spectrale des problèmes avec et sans convection thermique au delà du premier mode ( $m > 0$ ). Pour rentrer dans le domaine d'application des approximations (6.51).
n°2	$\alpha\beta_o^2 t_f < 0.12$	Pour approcher la fonction exponentielle (6.59) par une droite.
n°3	$\beta_o^2 \ll \eta_1^2 = (\pi/L)^2$ donc : $\beta_o^2 < \varepsilon(\pi/L)^2$	Pour passer de l'équation (6.60) à l'équation (6.48). Pour assurer moins de 1% d'erreur dans l'estimation de $\beta_o^2 + \eta_1^2$ par $\eta_1^2$ , on prend $\varepsilon = 10^{-2}$ .

\*\* On peut vérifier l'égalité (6.58) en faisant appel aux remarques R4 et R5. Pour  $\kappa_o \leq 0.3$ , on peut écrire  $J_1(\kappa_o) \approx \kappa_o/2$  et  $J_o(\kappa_m) \approx 1$ . On obtient alors à partir de l'équation (6.52) :  $\beta_o^2 \approx 2H/R$ .

En remplaçant  $\beta_o = 0.6/R$  (contrainte n°1) dans les inégalités n°2 et n°3 du tableau ci-dessus, on obtient :

$$R > \sqrt{3\alpha t_f} \quad \text{et} \quad R > 1.91 L$$

Il ressort donc un critère simple pour décider de la valeur de  $R$  une fois que  $L$  et  $t_f$  ont été fixés (voir section 6.3.1) :

$$R > \max\left\{\sqrt{3\alpha t_f}, 1.91 L\right\} \quad (6.61)$$

En défaisant la transformation de variables (6.9), l'équation (6.61) devient :

$$R > \max\left\{\sqrt{3\alpha_r t_f}, 1.91(\lambda_r/\lambda_z)^{1/2} L\right\} \quad (6.62)$$

où  $\alpha_r = \lambda_r / \rho c_p$ .

### 6.3.4. Une méthode simple pour guider le choix des conditions expérimentales

La méthode pour guider le choix des conditions expérimentales a été déjà définie au fil des sections précédentes. Elle consiste à :

- Fixer les valeurs de  $T_L^*$ ,  $\Delta T^*$  et  $\beta^*$  (voir section 6.3.1) et déterminer les valeurs de  $L$ ,  $\varphi$  et  $t_f$  à partir des équations (6.31). On peut également fixer  $T_L^*$ ,  $\Delta T^*$  et  $t_f$ , puis déterminer  $L$ ,  $\varphi$  ; ou encore, fixer  $(T_L^*, \Delta T^*, \varphi)$  et calculer  $L$  et  $t_f$ .
- Fixer la valeur de  $R$  (si le dispositif n'est pas isolé latéralement) de façon à satisfaire le critère donné par l'équation (6.62), permettant d'assurer l'insensibilité de la réponse thermique de l'échantillon sur  $r=0$  aux échanges convectifs latéraux.

L'objectif de cette section est de vérifier à travers quelques exemples la pertinence de la méthode. Nous rappelons qu'un bon choix des conditions expérimentales ( $L, R, \varphi$  et  $t_f$ ) doit aboutir à des réponses thermiques insensibles au coefficient de convection  $h$  et permettant l'estimation des deux paramètres caractérisant thermiquement l'échantillon :  $\lambda_z$  et  $\rho c_p$ . On insiste sur le fait que la méthode du plan chaud ne permet en aucun cas la détermination simultanée de  $\lambda_z$  et  $\lambda_r$ . Deux mesures distinctes sont toujours requises.

Par ailleurs, nous montrerons que le choix de développement effectué dans la section 6.3.3 est judicieux. Nous rappelons qu'il consiste à ne pas essayer de créer un gradient thermique dans la direction  $O\vec{r}$  en forçant la convection latérale, mais à rendre négligeable l'effet de celle-ci sur la réponse thermique de l'échantillon aux points d'observation.

On considère alors trois échantillons représentatifs de l'ensemble des matériaux étudiés au cours de ce travail de thèse. Les propriétés thermiques de ces échantillons sont données dans les colonnes 2 à 4 du tableau 6.4. Les matériaux orthotropes (échantillons n°2 et n°3) sont testés en faisant

coïncider l'axe de compression de l'échantillon tantôt avec l'axe  $O\bar{z}$  du dispositif ( $\lambda_z = \lambda_{axiale \text{ échantillon}}$ ), tantôt avec l'axe  $O\bar{r}$  ( $\lambda_z = \lambda_{radiale \text{ échantillon}}$ ). Les dimensions des échantillons (colonnes 5 et 6, tableau 6.4) et les puissances de chauffage (colonne 7, tableau 6.4) ont été déterminées en appliquant la méthode de choix des conditions expérimentales décrite ci-dessus. Pour ce faire, on a fixé  $t_f = 200s$ ,  $T_L^* = 7^\circ C$  et  $\Delta T^* = 3^\circ C$  pour tous les échantillons ; ils sont donc forcés à suivre une même évolution thermique aux temps longs. De ce fait, on peut analyser la logique des résultats obtenus en termes de dimensions : a) on note, d'abord, que  $L$  est d'autant plus grand que la conductivité thermique selon l'axe  $O\bar{z}$  du dispositif ( $\lambda_z$ ) est élevée ; c) ensuite, on constate que la valeur de  $R$  augmente avec la valeur de la conductivité thermique selon l'axe  $O\bar{r}$  du dispositif ( $\lambda_r$ ). Les deux observations sont en parfaite cohérence avec la physique. On voit également apparaître un deuxième désavantage de la méthode du plan chaud : le besoin d'assez gros échantillons pour des conductivités thermiques  $\lambda_r$  élevées (ex. :  $R > 11 \text{ cm}$  pour l'échantillon n°3 avec  $\lambda_r = 32 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$ ).

Echantillon	$\lambda_z$ ( $W.m^{-1}.K^{-1}$ )	$\lambda_r$ ( $W.m^{-1}.K^{-1}$ )	$\rho c_p$ ( $J.m^{-3}.K^{-1}$ )	$L$ (m)	$R$ (m)	$P$ (W)
1	1.2	1.2	$1.27 \cdot 10^6$	0.0120	0.0238	1.08
2a	2.0	18.5	$1.57 \cdot 10^6$	0.0138	0.0841	19.25
2b	18.5	2.0	$1.57 \cdot 10^6$	0.0420	0.0276	6.31
3a	4.5	32.0	$1.55 \cdot 10^6$	0.0208	0.1113	50.18
3b	32.0	4.5	$1.55 \cdot 10^6$	0.0556	0.0413	18.47

Tableau 6.4 : Résultats du choix des conditions expérimentales sur trois échantillons représentatifs des matériaux graphite/sel étudiés.

Comme déjà indiqué, on a forcé tous les échantillons à suivre une même évolution thermique aux temps longs. La figure 6.3, montre l'évolution au cours du temps des températures en face avant ( $T(0,0,t)$ ) et en face arrière ( $T(0,L,t)$ ) de l'échantillon n°2 ( $\lambda_r = 18.5 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$ ). Toutes les simulations ont été réalisées avec  $h = 5 \text{ W.m}^{-2}.K^{-1}$ , que l'on peut considérer comme étant une valeur limite supérieure du coefficient d'échanges convectifs pour les dispositifs étudiés. Pour vérifier la pertinence des choix des dimensions des échantillons, nous allons analyser la sensibilité de  $T(0,0,t)$  et  $T(0,L,t)$ , ainsi que celle de leurs dérivées respectives par rapport au temps, aux valeurs des paramètres physiques  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$ ,  $\rho c_p$  et  $h$ . Nous rappelons la définition de la sensibilité réduite d'une grandeur  $X(t)$  quelconque, dépendant des paramètres  $\theta_{i=1,2,\dots}$ , à la valeurs du  $i^{\text{ème}}$  paramètre  $\theta_i$  :

$$s_{X \leftarrow \theta_i} = \theta_i \left. \frac{\partial X(t)}{\partial \theta_i} \right|_{\theta_{j \neq i}} \quad (\text{mêmes unités que } X(t))$$

Nous illustrons à travers les résultats correspondant à l'échantillon 2a ( $\lambda_r = 18.5 \text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$ ) l'efficacité de la méthode proposée pour décider de  $L$ ,  $R$ , et  $\varphi$ . Les figures 6.5 et 6.7 montrent les résultats de l'analyse de sensibilité paramétrique effectuée sur les réponses thermiques en face avant

et arrière de l'échantillon ; tandis que les figures 6.6 et 6.8 montrent les résultats correspondant à l'analyse de sensibilité réalisée sur leurs dérivées temporelles. On constate que :

- La sensibilité de la réponse thermique de l'échantillon aux paramètres  $h$  et  $\lambda_y$  est nulle, ce qui montre bien la pertinence du choix de  $R$ .
- Aux temps courts, les paramètres  $\lambda_z$  et  $\rho c_p$  sont fortement corrélés. La réponse thermique en face avant ne permettra que l'identification de l'effusivité thermique (les courbes de sensibilité aux deux paramètres se superposent, fig. 6.5) ; tandis qu'à partir de l'observation en face arrière, on aura la possibilité d'estimer la diffusivité thermique (les courbes de sensibilité sont symétriques par rapport à l'axe d'abscisses, fig. 6.7).
- Par contre aux temps longs, les sensibilités des deux paramètres recherchés ( $\lambda_z$  et  $\rho c_p$ ) sont parfaitement décorrélées (fig. 6.5 et 6.7). On pourrait « a priori » les estimer à partir de l'observation de la température en face avant ou en face arrière.
- En cohérence avec les développements théoriques, on observe qu'aux temps longs les dérivées par rapport au temps des températures observées (fig. 6.6 et 6.8) ne sont sensibles qu'au paramètre  $\rho c_p$  ; tandis que la différence de température entre les faces avant et arrière (fig. 6.4), ne répond qu'aux variations de  $\lambda_z$ . Ces résultats laissent entrevoir des possibilités intéressantes d'estimation sur lesquelles nous reviendrons au chapitre 8.

Des résultats semblables ont été obtenus pour l'ensemble des échantillons.

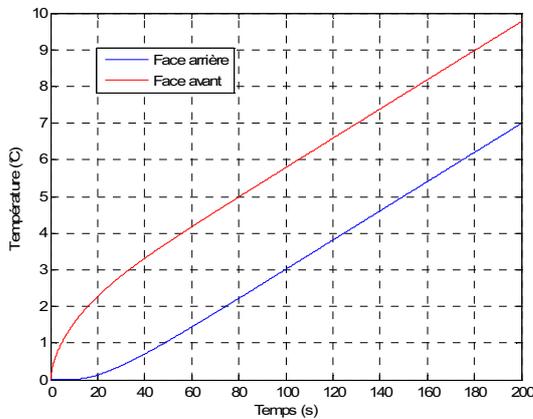


Figure 6.3 : Evolution thermique des échantillons en face avant et en face arrière.

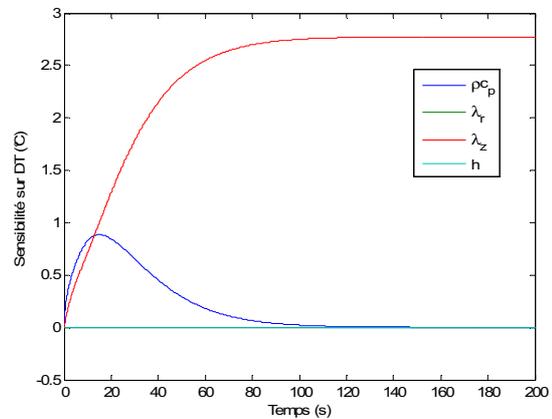


Figure 6.4 : Sensibilité de la différence de température entre les faces avant et arrière aux paramètres thermiques.

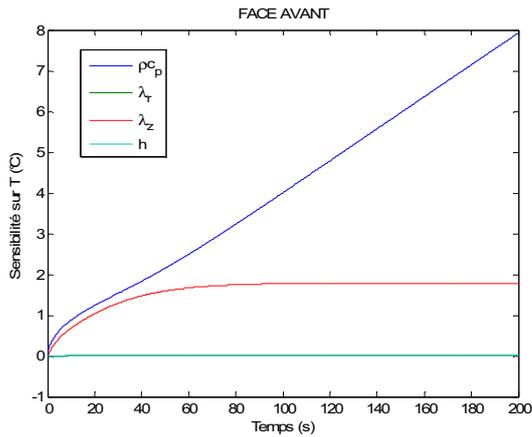


Figure 6.5 : Sensibilité de la température en face avant aux paramètres thermiques.

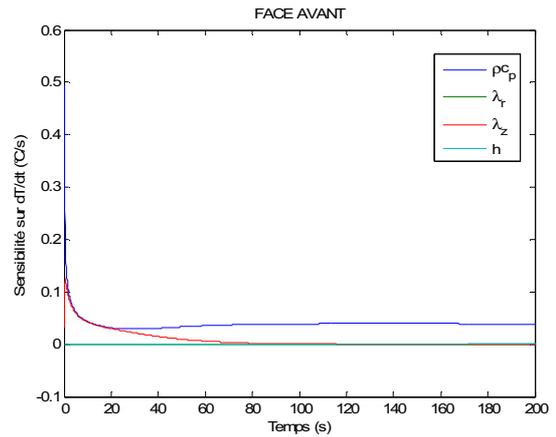


Figure 6.6 : Sensibilité de la dérivée par rapport au temps de la température en face avant aux paramètres thermiques.

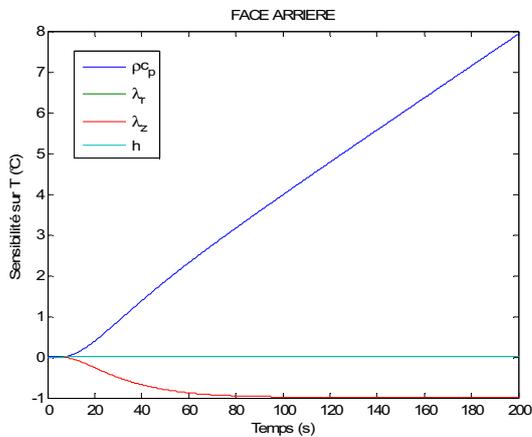


Figure 6.7 : Sensibilité de la température en face arrière aux paramètres thermiques.

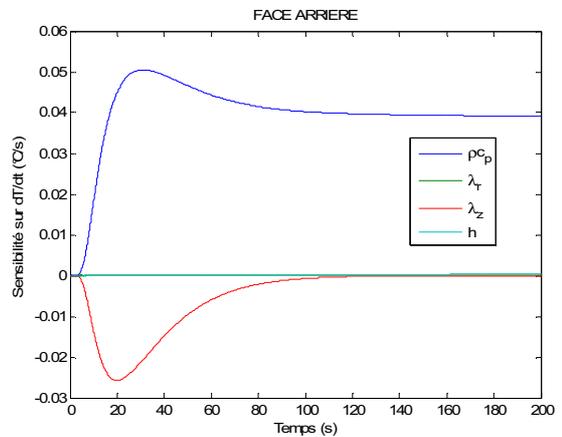


Figure 6.8 : Sensibilité de la dérivée par rapport au temps de la température en face arrière aux paramètres thermiques.

Nous avons répété l'étude ci-dessus, en réduisant de moitié les rayons des échantillons et en augmentant la valeur du coefficient d'échange convectif ( $h = 25 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ ). Les résultats obtenus nous confortent par rapport au choix de développement effectué. Nous les illustrons à travers les figures 6.9 et 6.10 correspondant à l'échantillon n°1. On constate que créer un gradient thermique dans la direction  $O\vec{r}$  rend visible la conductivité  $\lambda_r$ , mais introduit aux temps longs des fortes corrélations entre les paramètres  $\rho c_p$  et  $h$ , ainsi qu'entre  $\lambda_z$  et  $\lambda_r$ .

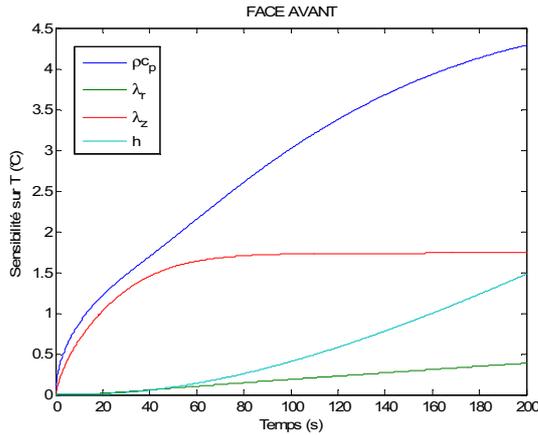


Figure 6.9 : Sensibilité de la température en face avant aux paramètres thermiques.

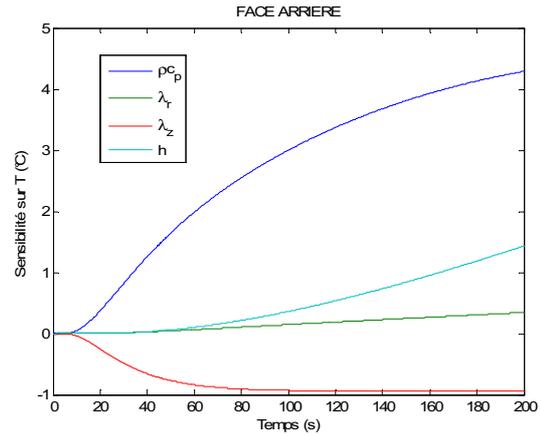


Figure 6.10 : Sensibilité de la température en face arrière aux paramètres thermiques.

## 6.4. Analyse des dispositifs de type disque chaud

L'objectif principal de cette section est d'étudier la possibilité d'estimer  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$  et  $\rho c_p$  simultanément en réduisant l'étendue de la sonde chauffante ( $R_o < R$ ). Comme nous l'avons déjà indiqué (voir chapitre précédent), nous avons privilégié les dispositifs de type disque chaud face aux dispositifs de type ruban chaud. Néanmoins, tous les éléments requis pour traiter le cas du ruban chaud, en suivant une démarche tout à fait semblable à celle qui suit, sont apportés dans les sections 6.1 et 6.2.

Comme précédemment, quel que soit le dispositif disque chaud considéré (voir tableau 6.2), l'évolution thermique dans l'échantillon peut s'écrire :

$$T(r, z, t) = \frac{\alpha \varphi}{\lambda} \int_{\tau=0}^t \phi(z, t/0, \tau) \left\{ \int_{r'=0}^{R_o} r' \psi(r, t/r', \tau) dr' \right\} d\tau \quad (6.63)$$

où l'on remarquera que la limite d'intégration sur  $r'$  n'est plus  $R$ , mais  $R_o$ . La fonction  $\phi(z, t/0, \tau)$  est la même pour tous les dispositifs :

$$\phi(z, t/0, \tau) = \frac{2}{L} \sum_{p=1}^{\infty} e^{-\alpha \eta_p^2 (t-\tau)} \cos(\eta_p z) + \frac{1}{L} \quad \text{avec} \quad \sin(\eta_p L) = 0 \quad (6.64)$$

Quant à la fonction  $\psi(r, t/r', \tau)$ , elle est donnée par :

a) disque chaud à  $R \rightarrow \infty$

$$\psi(r, t/r', \tau) = (2\alpha(t-\tau))^{-1/2} \exp\left(-\frac{r^2 + r'^2}{4\alpha(t-\tau)}\right) I_0\left(\frac{rr'}{2\alpha(t-\tau)}\right) \quad (6.65)$$

ou encore (cf. [94])

$$\psi(r, t/r', \tau) = \int_{\beta=0}^{\infty} e^{-\alpha\beta^2(t-\tau)} \beta J_0(\beta r) J_0(\beta r') dr' d\beta \quad (6.66)$$

b) disque chaud à  $R$  fini et isolation latérale parfaite

$$\psi(r, t/r', \tau) = \sum_{m=1}^{\infty} e^{-\alpha\beta_m^2(t-\tau)} \frac{2}{R^2 J_o^2(\beta_m R)} J_o(\beta_m r) J_o(\beta_m r') + \frac{2}{R^2} \quad (6.67)$$

avec :  $J_1(\beta_m R) = 0$

c) disque chaud à  $R$  fini et convection latérale

$$\psi(r, t/r', \tau) = \sum_{m=0}^{\infty} e^{-\alpha\beta_m^2(t-\tau)} \frac{2}{R^2 J_o^2(\beta_m R)} \frac{\beta_m^2}{\beta_m^2 + H^2} J_o(\beta_m r) J_o(\beta_m r') \quad (6.68)$$

$$\text{avec : } -\beta_m J_1(\beta_m R) + H J_o(\beta_m R) = 0 \quad (6.69)$$

Sauf indication contraire, nous travaillerons en « variables transformées » (voir eq. (6.9)). Le retour aux « variables naturelles » ne se fera qu'en fin de développement/démonstration si nécessaire.

#### 6.4.1. Disque chaud à $0 \leq z \leq L$ & $0 \leq r < \infty$

En remplaçant dans l'équation (6.63) les fonctions  $\phi(z, t/0, \tau)$  et  $\psi(r, t/r', \tau)$  par les expressions (6.64) et (6.66) et en intégrant par rapport à  $r'$  et  $\tau$ , on obtient :

$$T(r, z, t) = \frac{2\varphi R_o}{\lambda L R} \int_{\beta=0}^{\infty} \left\{ \sum_{p=1}^{\infty} \frac{R J_1(\beta R_o)}{\beta^2 + \eta_p^2} J_o(\beta r) \cos(\eta_p z) \left[ 1 - e^{-\alpha(\beta^2 + \eta_p^2)t} \right] \right\} d\beta + \frac{\varphi R_o}{\lambda L R} \int_{\beta=0}^{\infty} \left\{ \sum_{p=1}^{\infty} \frac{R J_1(\beta R_o)}{\beta^2} J_o(\beta r) \left[ 1 - e^{-\alpha\beta^2 t} \right] \right\} d\beta \quad (6.70)$$

Contrairement au cas du dispositif de type plan chaud à  $R \rightarrow \infty$  (section 6.3.1), la solution analytique ci-dessus est difficilement exploitable en pratique. Sachant que le disque chaud à  $R \rightarrow \infty$  peut être vu comme un cas limite du dispositif suivant, nous n'irons pas plus loin dans l'étude de l'équation (6.70). Nous signalons, néanmoins, la présence de la variable  $r$  dans la solution et donc l'existence de gradients thermiques non nuls aussi bien dans la direction  $O\bar{z}$  que dans la direction  $O\bar{r}$ . Il s'agit d'une condition nécessaire pour pouvoir parler d'identifier simultanément  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$  et  $\rho c_p$ .

#### 6.4.2. Disque chaud à $0 \leq z \leq L$ & $0 \leq r \leq R$ et isolation latérale parfaite

Nous remplaçons cette fois-ci les expressions (6.64) et (6.67) dans l'équation (6.63), et nous intégrons le résultat par rapport à  $r'$  et à  $\tau$ . On obtient<sup>††</sup> :

---

†† On notera que :  $\int_{r'=0}^{R_o} r' \psi(r, t/r', \tau) dr' = \sum_{m=1}^{\infty} 2 \frac{R_o}{R} \frac{J_1(\beta_m R_o)}{(\beta_m R) J_o^2(\beta_m R)} J_o(\beta_m r) + \left( \frac{R_o}{R} \right)^2$ .

Pour  $R_o = R$  ( $J_1(\beta_m R) = 0$ ), l'expression ci-dessus devient 1 et nous retrouvons le plan chaud.

$$\begin{aligned}
 T(r, z, t) = & 2 \frac{\varphi L}{\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right) \left( \frac{R}{L} \right)^2 \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} 2 \frac{K(\kappa_m, r)}{\kappa_m^2 + \mu_p^2} \cos(\mu_p z / R) \left[ 1 - e^{-(\alpha(\kappa_m^2 + \mu_p^2)/R^2)t} \right] \\
 & + 2 \frac{\varphi L}{\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right) \left( \frac{R}{L} \right)^2 \sum_{m=1}^{\infty} \frac{K(\kappa_m, r)}{\kappa_m^2} \left[ 1 - e^{-(\alpha\kappa_m^2/R^2)t} \right] \\
 & + 2 \frac{\varphi L}{\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 \left( \frac{R}{L} \right)^2 \sum_{p=1}^{\infty} \frac{\cos(\mu_p z / R)}{\mu_p^2} \left[ 1 - e^{-(\alpha\mu_p^2/R^2)t} \right] + \frac{\varphi}{\rho c_p L} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 t
 \end{aligned} \quad (6.71)$$

avec :

$$\kappa_m = \beta_m R, \quad \mu_p = \eta_p R \quad \text{et} \quad K(\kappa_m, r) = \frac{1}{\kappa_m} \frac{J_1(\kappa_m R_o / R)}{J_o^2(\kappa_m)} J_o(\kappa_m r / R) \quad (6.72)$$

On notera que pour  $R_o = R$ , on retrouve l'équation (6.27) donnant l'évolution du dispositif de type plan chaud équivalent.

Nous allons étudier maintenant l'évolution thermique de l'échantillon aux temps longs, là où les termes exponentiels dans l'équation (6.71) deviennent négligeables. Par ailleurs, nous centrons notre intérêt aux points situés en face avant ( $z = 0$ ) et en face arrière ( $z = L$ ) de l'échantillon. On peut alors écrire :

$$T_{t \rightarrow \infty}(r, 0, t) = \frac{\varphi L}{3\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 \left[ \frac{6}{(R_o/R)} \left( \frac{R}{L} \right)^2 (2S_b(r) + S_a(r)) + 1 \right] + \frac{\varphi}{\rho c_p L} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 t \quad (6.73)$$

$$T_{t \rightarrow \infty}(r, L, t) = -\frac{\varphi L}{6\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 \left[ \frac{-12}{(R_o/R)} \left( \frac{R}{L} \right)^2 (2S_c(r) + S_a(r)) + 1 \right] + \frac{\varphi}{\rho c_p L} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 t \quad (6.74)$$

avec :

$$S_a(r) = \sum_{m=1}^{\infty} \frac{K(\kappa_m, r)}{\kappa_m^2} \quad S_b(r) = \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \frac{K(\kappa_m, r)}{\kappa_m^2 + \mu_p^2} \quad S_c(r) = \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} (-1)^p \frac{K(\kappa_m, r)}{\kappa_m^2 + \mu_p^2} \quad (6.75)$$

On rappelle que :

$$\mu_p = p\pi R/L, \quad \sum_{p=1,2,\dots} 1/(p\pi)^2 = 1/6 \quad \text{et} \quad \sum_{p=1,2,\dots} (-1)^p / (p\pi)^2 = -1/12$$

A travers les équations (6.73) et (6.74), on constate qu'aux temps longs l'évolution thermique de l'échantillon est linéaire par rapport au temps et que la pente des droites représentant cette évolution est indépendante du point. Il s'agit du même type de comportement que l'on avait signalé pour les dispositifs de type plan chaud. Au centre de l'échantillon ( $r = 0$ ), les équations (6.73) et (6.74) deviennent :

$$T_{t \rightarrow \infty}(0, 0, t) = \frac{\varphi L}{3\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 f_o + \frac{\varphi}{\rho c_p L} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 t \quad (6.76)$$

$$T_{t \rightarrow \infty}(0, L, t) = -\frac{\varphi L}{6\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 f_L + \frac{\varphi}{\rho c_p L} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 t \quad (6.77)$$

avec :

$$f_o = \frac{6}{(R_o/R)} \left(\frac{R}{L}\right)^2 (2S_b(0) + S_a(0)) + 1, \quad f_L = -\frac{12}{(R_o/R)} \left(\frac{R}{L}\right)^2 (2S_c(0) + S_a(0)) + 1 \quad (6.78)$$

Pour  $R_o = R$ , alors  $f_o = f_L = 1$ , et on retrouve l'évolution en plan chaud.

Toujours aux temps longs, nous allons donner les expressions de quelques différences de température apportant une mesure des gradients thermiques macroscopiques dans les directions  $O\bar{z}$  et  $O\bar{r}$ . Il s'agit de :

**a)** La différence de température entre les points  $(0,0)$  et  $(0,L)$

$$\Delta T_{0L} \equiv T_{t \rightarrow \infty}(0,0,t) - T_{t \rightarrow \infty}(0,L,t) = \Delta T_{pc} g_{0L} \quad (6.79)$$

$\Delta T_{pc} = \varphi L / 2\lambda$  est la différence de température face avant/face arrière du dispositif plan chaud équivalent, et

$$g_{0L} = \left(\frac{R_o}{R}\right)^2 \left[ \frac{8(S_b(0) - S_c(0)) \left(\frac{R}{L}\right)^2}{(R_o/R)} + 1 \right] \quad (6.80)$$

**b)** La différence de température entre les points  $(0,0)$  et  $(R,0)$

$$\Delta T_{0R,z=0} \equiv T_{t \rightarrow \infty}(0,0,t) - T_{t \rightarrow \infty}(R,0,t) = \Delta T_{pc} g_{0R,z=0} \quad (6.81)$$

avec :

$$g_{0R,z=0} = 4 \left(\frac{R_o}{R}\right) \left(\frac{R}{L}\right)^2 [2(S_b(0) - S_b(R)) + S_a(0) - S_a(R)] \quad (6.82)$$

**c)** La différence de température entre les points  $(0,L)$  et  $(R,L)$

$$\Delta T_{0R,z=L} \equiv T_{t \rightarrow \infty}(0,L,t) - T_{t \rightarrow \infty}(R,L,t) = \Delta T_{pc} g_{0R,z=L} \quad (6.83)$$

avec :

$$g_{0R,z=L} = 4 \left(\frac{R_o}{R}\right) \left(\frac{R}{L}\right)^2 [2(S_c(0) - S_c(R)) + S_a(0) - S_a(R)] \quad (6.84)$$

Nous passons maintenant à l'évaluation numérique de  $g_{0L}$ ,  $g_{0R,z=0}$  et  $g_{0R,z=L}$  qui représentent les rapports entre les différences de température étudiées et la différence de température face avant/face arrière du dispositif plan chaud équivalent :

$$g_{0L} = \Delta T_{0L} / \Delta T_{pc} \quad g_{0R,z=0} = \Delta T_{0R,z=0} / \Delta T_{pc} \quad g_{0R,z=L} = \Delta T_{0R,z=L} / \Delta T_{pc}$$

Nous balayons des dispositifs avec :

$$0 \leq \left(\frac{R_o}{R}\right) \leq 1 \quad \text{et} \quad 0.5 \leq \left(\frac{R}{L}\right) \leq 5$$

L'évaluation des séries (6.75) est faite en les tronquant à environ 400 termes, ce qui est très largement suffisant (on peut couper bien avant). Les résultats obtenus sont montrés dans les figures 6.11 à 6.13. On constate que :

- La valeur  $R_o/R \approx 0.6$  du rapport « rayon sonde/ rayon échantillon » maximise les gradients thermiques macroscopiques dans la direction  $O\bar{r}$ , que ce soit en face arrière ( $\Delta T_{0R,z=L}$ ) ou en face avant ( $\Delta T_{0R,z=0}$ ) et indépendamment de la valeur de  $R/L$ .

- Avec  $R_o/R = 0.6$ , la valeur  $R/L = 2$  du rapport « rayon/épaisseur » de l'échantillon assure  $\Delta T_{0R, z=0} \approx \Delta T_{pc}$  ; autrement dit, on obtient un gradient thermique macroscopique en face avant et dans la direction  $O\vec{r}$  du même ordre de grandeur que celui qui s'établirait dans la direction  $O\vec{z}$  du dispositif plan chaud équivalent. Par contre, en face arrière, il faut  $R/L = 4 - 4.5$  pour obtenir  $\Delta T_{0R, z=L} \approx \Delta T_{pc}$ .
- Toujours à  $R_o/R = 0.6$ , on vérifie  $\Delta T_{0L} \geq 0.9 \Delta T_{pc}$  pour  $R/L \geq 1.5$ .

Il semble donc opportun de retenir  $R_o/R = 0.6$  comme valeur du rapport « rayon sonde/ rayon échantillon » et  $R/L \geq 2$  pour le rapport « rayon/épaisseur » de l'échantillon. Nous répétons que  $R/L = 2$  assure des gradients thermiques macroscopiques du même ordre de grandeur dans les directions  $O\vec{z}$  ( $r = 0$ ) et  $O\vec{r}$  ( $z = 0$ ).

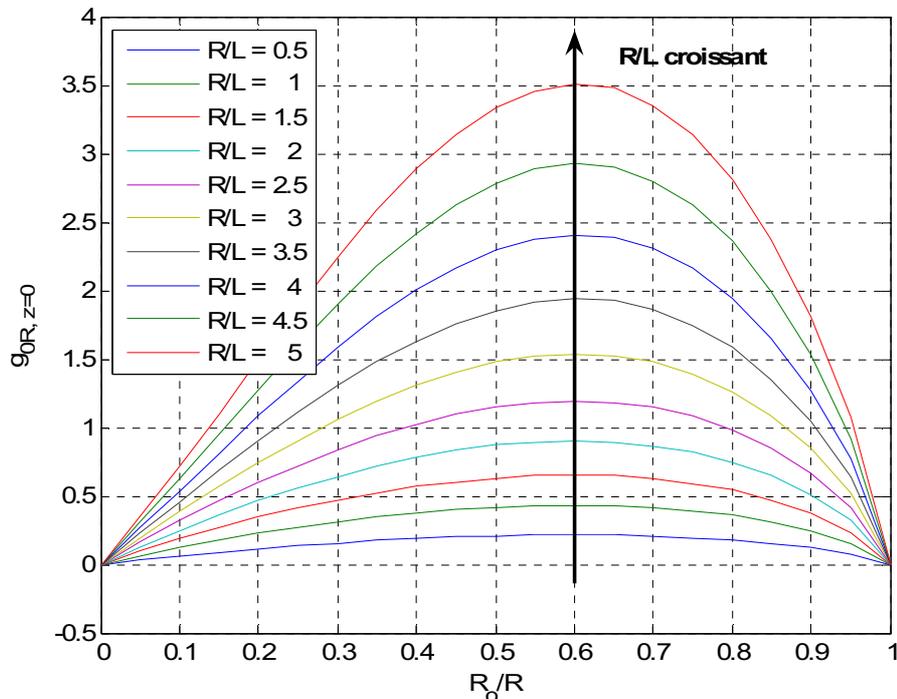


Figure 6.11 : Représentation de  $g_{0R, z=0} = \Delta T_{0R, z=0} / \Delta T_{pc}$  en fonction de  $R_o / R$  pour différentes valeurs du rapport  $R / L$ .

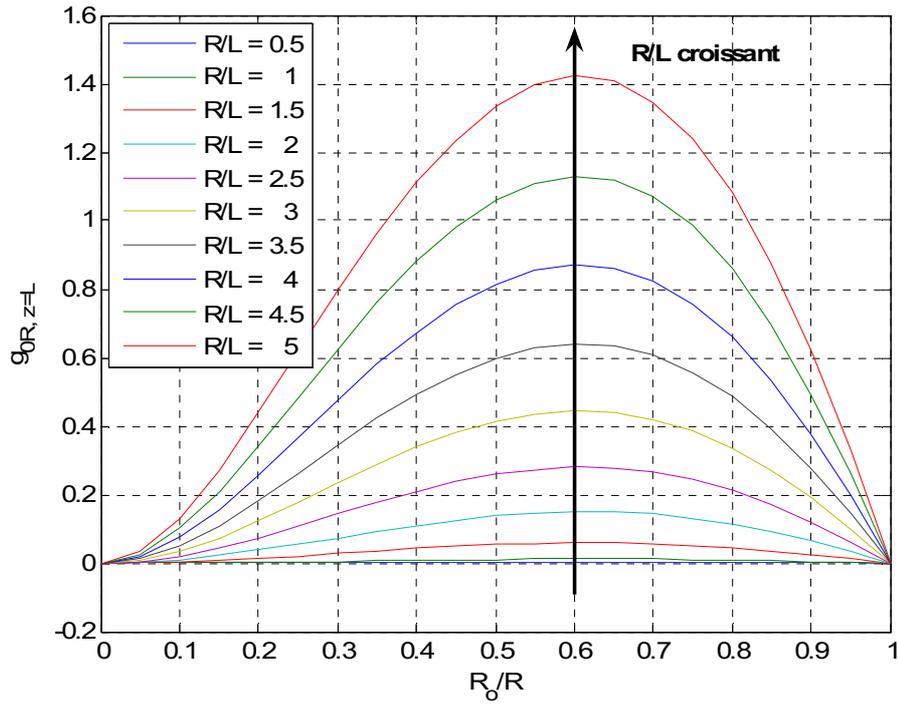


Figure 6.12 : Représentation de  $g_{0R, z=L} = \Delta T_{0R, z=L} / \Delta T_{pc}$  en fonction de  $R_o / R$  pour différentes valeurs du rapport  $R / L$ .

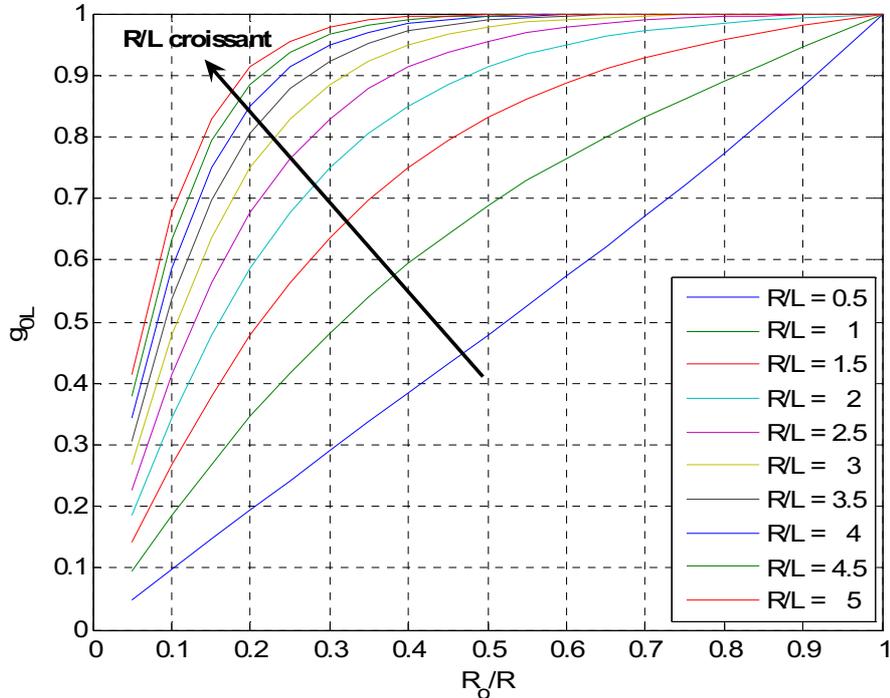


Figure 6.13 : Représentation de  $g_{0L} = \Delta T_{0L} / \Delta T_{pc}$  en fonction de  $R_o / R$  pour différentes valeurs du rapport  $R / L$ .

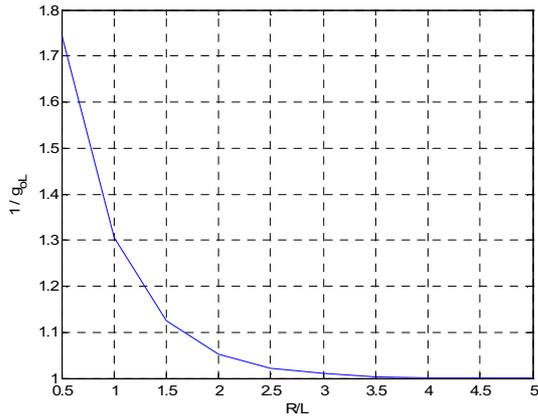


Figure 6.14 : Evolution de  $1/g_{0L}$  en fonction de  $R/L$  pour  $R_o/R = 0.6$ .

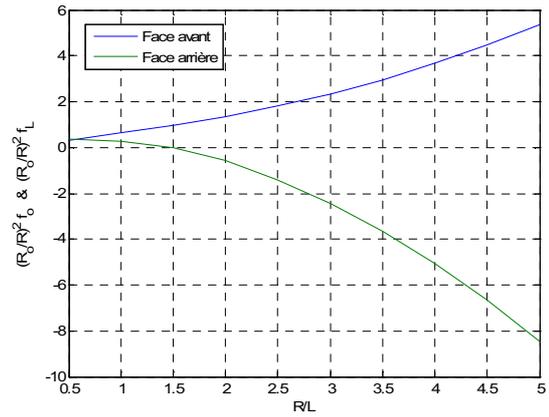


Figure 6.15 : Représentation de  $(R_o/R)^2 f_o$  et  $(R_o/R)^2 f_L$  en fonction de  $R/L$  ( $R_o/R = 0.6$ ).

Une fois que les rapports  $R_o/R$  et  $R/L$  ont été fixés, on peut se poser la question du choix des conditions expérimentales manquantes : la densité de flux à appliquer ( $\varphi$ ), l'épaisseur de l'échantillon ( $L$ ) et la durée de l'expérience ( $t_f$ ). Comme pour les dispositifs de type plan chaud, une méthode simple pouvant guider ces choix se dégage des équations (6.76) et (6.77). On peut, par exemple, fixer en fonction des critères de type signal sur bruit : a) la valeur de la température en face arrière en fin d'expérience,  $T_L^*$  ; b) la valeur de la pente des équations (6.76) et (6.77),  $\beta^*$  ; et c) la valeur de la différence de températures face avant/face arrière aux temps longs,  $\Delta T^{*\ddagger}$ . On obtient ainsi un système à trois équations et trois inconnues permettant de déterminer (pourvu que  $\rho c_p$  et  $\lambda$  soient connues en ordre de grandeur) les valeurs de  $L$ ,  $\varphi$  et  $t_f$  :

$$\left. \begin{aligned} -\frac{\varphi L}{6\lambda} \left(\frac{R_o}{R}\right)^2 f_L + \frac{\varphi}{\rho c_p L} \left(\frac{R_o}{R}\right)^2 t_f &= T_L^* \\ \frac{\varphi}{\rho c_p L} \left(\frac{R_o}{R}\right)^2 &= \beta^* \\ \frac{\varphi L}{2\lambda} g_{0L} &= \Delta T^* \end{aligned} \right\} \Rightarrow \begin{cases} t_f = \frac{1}{\beta^*} \left[ T_L^* + \frac{\Delta T^*}{3} \left(\frac{R_o}{R}\right)^2 \left(\frac{f_L}{g_{0L}}\right) \right] \\ L^2 = \frac{2\alpha \Delta T^*}{\beta^*} \left(\frac{R_o}{R}\right)^2 \left(\frac{1}{g_{0L}}\right) \\ \varphi = \rho c_p L \beta^* \left(\frac{R_o}{R}\right)^{-2} \end{cases} \quad (6.85)$$

Pour  $R_o/R = 0.6$  et  $0.5 \leq R/L \leq 5$ , les facteurs  $(R_o/R)^2 f_o$ ,  $(R_o/R)^2 f_L$  et  $g_{0L}$ , représentés dans les figures 6.14 et 6.15, peuvent être approchés par :

$$\begin{cases} (R_o/R)^2 f_o \approx 0.16(R/L)^2 + 0.25(R/L) + 0.21 \\ (R_o/R)^2 f_L \approx -0.43(R/L)^2 + 0.38(R/L) + 0.33 \\ \ln[(1/g_{0L}) - 1] \approx 0.028(R/L)^3 - 0.14(R/L)^2 - 1.6(R/L) + 0.49 \end{cases} \quad (6.86)$$

<sup>‡</sup> On pourrait également fixer le trinôme  $(T_L^*, \Delta T^*, t_f)$  et calculer  $L$  et  $\varphi$  ; ou encore, fixer  $(T_L^*, \Delta T^*, \varphi)$  et déterminer  $L$  et  $t_f$ .

avec des résidus dont la norme est inférieure à 0.09.

Pour des matériaux orthotropes, il est nécessaire de défaire la transformation (6.9) pour récupérer les variables naturelles du problème. Ceci implique les remplacements suivants dans les équations (6.76), (6.77), (6.85) et (6.86) :

$$\lambda = \lambda_z^{1/3} \lambda_r^{2/3}; \quad L \rightarrow \left( \frac{\lambda}{\lambda_z} \right)^{1/2} L; \quad R \rightarrow \left( \frac{\lambda}{\lambda_r} \right)^{1/2} R; \quad \varphi \rightarrow \left( \frac{\lambda_r}{\lambda} \right) \varphi \quad (6.87)$$

Elles deviennent :

$$T_{t \rightarrow \infty}(0,0,t) = \frac{\varphi L}{3\lambda_z} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 \bar{f}_o + \frac{\varphi}{\rho c_p L} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 t \quad (6.88)$$

$$T_{t \rightarrow \infty}(0,L,t) = -\frac{\varphi L}{6\lambda_z} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 \bar{f}_L + \frac{\varphi}{\rho c_p L} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 t \quad (6.89)$$

et

$$\left. \begin{aligned} -\frac{\varphi L}{6\lambda_z} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 \bar{f}_L + \frac{\varphi}{\rho c_p L} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 t_f = T_L^* \\ \frac{\varphi}{\rho c_p L} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 = \beta^* \\ \frac{\varphi L}{2\lambda_z} \bar{g}_{0L} = \Delta T^* \end{aligned} \right\} \Rightarrow \left\{ \begin{aligned} t_f = \frac{1}{\beta^*} \left[ T_L^* + \frac{\Delta T^*}{3} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 \left( \frac{\bar{f}_L}{\bar{g}_{0L}} \right) \right] \\ L^2 = \frac{2\alpha_z \Delta T^*}{\beta^*} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 \left( \frac{1}{\bar{g}_{0L}} \right) \\ \varphi = \rho c_p L \beta^* \left( \frac{R_o}{R} \right)^{-2} \end{aligned} \right. \quad (6.90)$$

avec (pour  $R_o/R = 0.6$  et  $0.5 \leq \varepsilon R/L \leq 5$ ) :

$$\left\{ \begin{aligned} (R_o/R)^2 \bar{f}_o &\approx 0.16\varepsilon^2 (R/L)^2 + 0.25\varepsilon(R/L) + 0.21 \\ (R_o/R)^2 \bar{f}_L &\approx -0.43\varepsilon^2 (R/L)^2 + 0.38\varepsilon(R/L) + 0.33 \\ \ln[(1/\bar{g}_{0L}) - 1] &\approx 0.028\varepsilon^3 (R/L)^3 - 0.14\varepsilon^2 (R/L)^2 - 1.6\varepsilon(R/L) + 0.49 \end{aligned} \right. \quad (6.91)$$

où  $\varepsilon^2 = (\lambda_z / \lambda_r)$  mesure le degré d'orthotropie.

Nous arrivons maintenant à **la question centrale** : peut-on prétendre à une estimation simultanée de  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$  et  $\rho c_p$  à partir d'une expérience disque chaud ? Sans compter avec l'information qui peuvent être apportée par les réponses thermiques aux temps courts, les équations (6.88) et (6.89) montrent que l'observation aux temps longs des températures  $T_{t \rightarrow \infty}(0,0,t)$  et  $T_{t \rightarrow \infty}(0,L,t)$  pourrait être suffisante. En effet, la pente de ces droites donne accès à  $\rho c_p$  ; tandis que leurs constantes respectives fournissent deux équations à deux inconnues :  $\lambda_z$  et  $\varepsilon^2 = (\lambda_z / \lambda_r)$ .

Enfin, nous allons (toujours aux temps longs) étudier les gradients thermiques locaux sur  $z=0$  (face avant) et sur  $z=L$  (face arrière) afin de rechercher des points privilégiés d'observation. A partir des équations (6.73) et (6.74), exprimées en variables transformées, on obtient :

$$\frac{\partial T_{t \rightarrow \infty}(r,0,t)}{\partial r} = 2 \frac{\varphi L}{\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right) \left( \frac{R}{L} \right)^2 (2S_b'(r) + S_a'(r)) \quad (6.92)$$

$$\frac{\partial T_{l \rightarrow \infty}(r, L, t)}{\partial r} = 2 \frac{\varphi L}{\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right) \left( \frac{R}{L} \right)^2 (2S_c'(r) + S_a'(r)) \quad (6.93)$$

avec :

$$S_a'(r) = \sum_{m=1}^{\infty} \frac{K'(\kappa_m, r)}{\kappa_m^2} \quad S_b'(r) = \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \frac{K'(\kappa_m, r)}{\kappa_m^2 + \mu_p^2} \quad S_c'(r) = \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} (-1)^p \frac{K'(\kappa_m, r)}{\kappa_m^2 + \mu_p^2} \quad (6.94)$$

et :

$$K'(\kappa_m, r) \equiv \frac{dK(\kappa_m, r)}{dr} = - \frac{J_1(\kappa_m R_o / R) J_1(\kappa_m r / R)}{J_o^2(\kappa_m)}$$

Nous avons représenté dans la figure 6.16, les termes  $2S_b'(r) + S_a'(r)$  et  $2S_c'(r) + S_a'(r)$  des équations (6.92) et (6.93) pour  $R_o/R=0.6$  et  $R/L=2, 4$ . On remarque que les gradients thermiques les plus importants dans la direction  $O\vec{r}$  vont apparaître en face avant à une distance  $r=R_o$  de l'axe de symétrie de l'échantillon. Par conséquent, il pourrait être intéressant d'observer la réponse thermique de l'échantillon, que ce soit en face arrière ou en face avant, non pas à  $r=0$  mais à  $r=R_o$  environ.

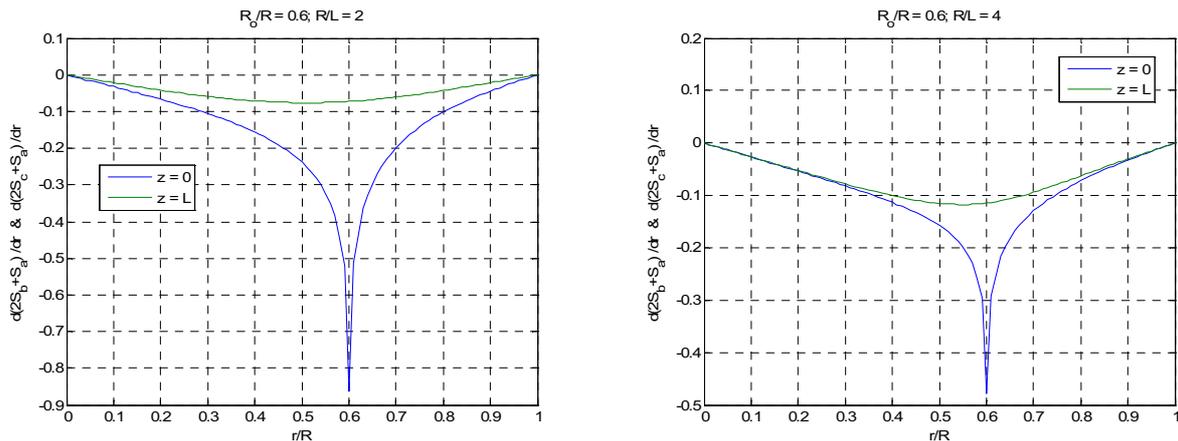


Figure 6.16 : Termes  $2S_b'(r) + S_a'(r)$  et  $2S_c'(r) + S_a'(r)$  des équations (6.92) et (6.93) pour  $R_o/R=0.6$  et  $R/L=2$  (à gauche), et  $R_o/R=0.6$  et  $R/L=4$  (à droite).

### 6.4.3. Disque chaud à $0 \leq z \leq L$ & $0 \leq r \leq R$ et des conditions aux limites de type mixte à $r=R$

Nous abordons l'étude de ce dernier dispositif dans le même esprit que celui du plan chaud équivalent (section 6.3.3). L'objectif est donc de trouver des critères concernant les dimensions des échantillons permettant de rendre la réponse thermique de ceux-ci (aux points d'observation) insensible aux transferts par convection qui ont lieu sur  $r=R$ . Nous allons suivre une démarche tout à fait semblable à celle qui a été adoptée dans la section 6.3.3 et nous montrerons que les critères :

n°1	$\kappa_o = \beta_o R < 0.6$	Objectif : a) Assurer la convergence spectrale des problèmes avec et sans convection thermique au delà du premier mode ( $m > 0$ ). b) Rentrer dans le domaine d'application des approximations (6.51).
n°2	$\alpha\beta_o^2 t_f < 0.12$	Objectif : Approcher la fonction exponentielle $e^{-\alpha(\kappa_o/R)^2 t}$ par la droite $1 - \alpha(\kappa_o/R)^2 t$ .
n°3	$\beta_o^2 \ll \eta_1^2 = (\pi/L)^2$ donc : $\beta_o^2 < \varepsilon(\pi/L)^2$	Objectif : Garantir $\beta_o^2 \ll \eta_p^2 \quad \forall p$ .

sont toujours d'actualité et suffisent à faire converger le problème d'évolution thermique de l'échantillon (aux points appartenant à la région  $0 \leq r \leq R_o$  et  $0 \leq z \leq L$ ) avec convection latérale vers celui d'évolution du même échantillon avec isolation latérale parfaite.

Les fonctions de Green  $\phi(z, t/z', \tau)$  et  $\psi(r, t/r', \tau)$  correspondant à ce dernier dispositif sont données par les équations (6.64) et (6.68)-(6.69) respectivement. Cependant, on a montré dans la section 6.3.3 que si  $\kappa_o = \beta_o R < 0.6$ , le fonction  $\psi(r, t/r', \tau)$  peut être approchée par :

$$\psi(r, t/r', \tau) \approx \frac{2}{R^2 J_o^2(\beta_o R)} \frac{\beta_o^2}{\beta_o^2 + H^2} J_o(\beta_o r) J_o(\beta_o r') e^{-\alpha\beta_o^2(t-\tau)} + \sum_{m=1}^{\infty} \frac{2}{R^2 J_o^2(\beta_m R)} J_o(\beta_m r) J_o(\beta_m r') e^{-\alpha\beta_m^2(t-\tau)} \quad (6.95)$$

avec :

$$\begin{cases} -(\beta_m R) J_1(\beta_m R) + (HR) J_o(\beta_m R) = 0 & m = 0 \\ J_1(\beta_m R) = 0 & m > 0 \end{cases} \quad (6.96)$$

On notera par la suite :  $\kappa_m = \beta_m R$ ,  $\mu_p = \eta_p R$  et  $Bi = HR$  (nombre de Biot).

En reportant les expressions (6.95) et (6.64) dans l'équation (6.63) et en intégrant sur  $r'$  et sur  $\tau$ , on obtient :

$$\begin{aligned} T(r, z, t) = & 2 \frac{\phi L}{\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right) \left( \frac{R}{L} \right)^2 \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} 2 \frac{K(\kappa_m, r)}{\kappa_m^2 + \mu_p^2} \cos(\mu_p z / R) \left[ 1 - e^{-(\alpha(\kappa_m^2 + \mu_p^2) / R^2) t} \right] \\ & + 2 \frac{\phi L}{\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right) \left( \frac{R}{L} \right)^2 \sum_{m=1}^{\infty} \frac{K(\kappa_m, r)}{\kappa_m^2} \left[ 1 - e^{-(\alpha\kappa_m^2 / R^2) t} \right] \\ & + 2 \frac{\phi L}{\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 \left( \frac{R}{L} \right)^2 \sum_{p=1}^{\infty} \frac{B(\kappa_o, r) \cos(\mu_p z / R)}{\kappa_o^2 + \mu_p^2} \left[ 1 - e^{-(\alpha(\kappa_o^2 + \mu_p^2) / R^2) t} \right] \\ & + \frac{\phi L}{\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 \left( \frac{R}{L} \right)^2 \frac{B(\kappa_o, r)}{\kappa_o^2} \left[ 1 - e^{-(\alpha\kappa_o^2 / R^2) t} \right] \end{aligned} \quad (6.97)$$

avec :

$$K(\kappa_m, r) = \frac{1}{\kappa_m} \frac{J_1(\kappa_m R_o / R)}{J_o^2(\kappa_m)} J_o(\kappa_m r / R) \quad \text{et} \quad B(\kappa_o, r) = \frac{2R}{R_o} \frac{\kappa_o^2}{\kappa_o^2 + Bi^2} K(\kappa_o, r) \quad (6.98)$$

On notera que les équations (6.97) et (6.71) ne diffèrent entre elles que par les deux derniers termes à droite. On va montrer qu'il suffirait que  $\alpha\beta_o^2 t_f < 0.12$  ( $\alpha(\kappa_o/R)^2 t_f < 0.12$ ) et  $\beta_o^2 \ll \eta_1^2$  ( $\kappa_o^2 \ll \mu_1^2$ ) pour que l'équation (6.97) puisse être approchée par l'équation (6.71) dans la région de l'espace comprise entre  $0 \leq r \leq R_o$  et  $0 \leq z \leq L$ .

Tout d'abord, comme dans la section 6.3.3, nous allons calculer le flux d'énergie échangé par convection entre le dispositif et son environnement. On peut montrer aisément à partir de l'équation (6.97) qu'il est donné par <sup>§§</sup>:

$$Q(t) \equiv -2\pi R \lambda \int_{z=0}^L \left. \frac{dT(r,z,t)}{dr} \right|_{r=R} dz = -2\pi \varphi R L^2 \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 \left( \frac{R}{L} \right)^2 \frac{B'}{\kappa_o^2} (1 - e^{-\alpha(\kappa_o^2/R^2)t}) \quad (6.99)$$

avec :

$$B' \equiv \left. \frac{dB(\kappa_o, r)}{dr} \right|_{r=R} = -\frac{2}{R_o} \frac{Bi}{\kappa_o^2 + Bi^2} \frac{\kappa_o J_1(\kappa_o R_o/R)}{J_o(\kappa_o)} \quad (6.100)$$

A  $t \rightarrow \infty$  (régime stationnaire), la puissance dissipée par convection doit être égale à la puissance injectée par la sonde chauffante ( $\varphi\pi R_o^2$ ). A partir de (6.99) et (6.100), on obtient alors :

$$\frac{Bi^2}{\kappa_o^2 + Bi^2} \frac{J_1(\kappa_o R_o/R)}{\kappa_o^2 J_1(\kappa_o)} = \frac{1}{4} \left( \frac{R_o}{R} \right) \quad (6.101)$$

Sachant que  $J_o(\kappa_o) = (\kappa_o/Bi)J_1(\kappa_o)$  (voir eq. (6.96)) et compte tenu de (6.101), la fonction  $B(\kappa_o, r)$  peut donc s'écrire :

$$B(\kappa_o, r) = \frac{2R}{R_o} \left( \frac{Bi^2}{\kappa_o^2 + Bi^2} \frac{J_1(\kappa_o R_o/R)}{\kappa_o J_1(\kappa_o)} \right) \frac{J_o(\kappa_o r/R)}{J_1(\kappa_o)} = \frac{\kappa_o}{2} \frac{J_o(\kappa_o r/R)}{J_1(\kappa_o)} \quad (6.102)$$

En supposant toujours  $\kappa_o = \beta_o R < 0.6$ , la fonction de Bessel  $J_1(\kappa_o)$  peut être approcher par :  $J_1(\kappa_o) \approx \kappa_o/2$  (voir section 6.3.3, remarque R4). Par ailleurs, pour  $r \leq R_o$  et  $R_o/R = 0.6$  comme préconisé, on aura  $\kappa_o r/R \leq 0.36$ . On peut alors supposer que  $J_o(\kappa_o r/R) \approx 1$  (voir section 6.3.3, remarque R5). On rappelle que  $J_o(\kappa_o r/R) = 1$  pour  $r = 0$ . Par conséquent, si  $\kappa_o = \beta_o R < 0.6$  et  $R_o/R \leq 0.6$ , on obtient :

$$B(\kappa_o, r \leq R_o) \approx 1 \quad (6.103)$$

Par ailleurs, si  $\alpha(\kappa_o/R)^2 t_f < 0.12$ , on pourra écrire :

$$e^{-\alpha(\kappa_o/R)^2 t} \approx 1 - \alpha(\kappa_o/R)^2 t \quad (6.104)$$

En tenant compte des approximations (6.103) et (6.104), l'équation (6.97) devient :

---

<sup>§§</sup> On notera que  $\left. \frac{dK(\kappa_m, r)}{dr} \right|_{r=R} = -\frac{J_1(\kappa_m R_o/R)J_1(\kappa_m)}{R J_o^2(\kappa_m)}$  devient nulle pour  $m > 0$  ( $J_1(\kappa_{m>0}) = 0$ ).

$$\begin{aligned}
 T(r \leq R_o, z, t) = & 2 \frac{\varphi L}{\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right) \left( \frac{R}{L} \right)^2 \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} 2 \frac{K(\kappa_m, r)}{\kappa_m^2 + \mu_p^2} \cos(\mu_p z / R) \left[ 1 - e^{-\alpha(\kappa_m^2 + \mu_p^2) / R^2 t} \right] \\
 & + 2 \frac{\varphi L}{\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right) \left( \frac{R}{L} \right)^2 \sum_{m=1}^{\infty} \frac{K(\kappa_m, r)}{\kappa_m^2} \left[ 1 - e^{-\alpha \kappa_m^2 / R^2 t} \right] \\
 & + 2 \frac{\varphi L}{\lambda} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 \left( \frac{R}{L} \right)^2 \sum_{p=1}^{\infty} \frac{\cos(\mu_p z / R)}{\kappa_o^2 + \mu_p^2} \left[ 1 - e^{-\alpha(\kappa_o^2 + \mu_p^2) / R^2 t} \right] + \frac{\varphi}{\rho c_p L} \left( \frac{R_o}{R} \right)^2 t
 \end{aligned} \tag{6.105}$$

Il suffit maintenant que  $\kappa_o^2 \ll \mu_1^2$ , pour garantir  $\kappa_o^2 \ll \mu_{m \geq 1}^2$  et retrouver l'équation (6.71).

Comme pour le dispositif de type plan chaud, le rayon de l'échantillon doit être tel que les contraintes  $\kappa_o = \beta_o R < 0.6$ ,  $\alpha(\kappa_o / R)^2 t_f < 0.12$  et  $\kappa_o^2 \ll \mu_1^2$  soient satisfaites. On retrouve donc (voir section 6.3.3) :

$$R > \max \left\{ \sqrt{3\alpha_r t_f}, 1.91 (\lambda_r / \lambda_z)^{1/2} L \right\} \tag{6.106}$$

où  $\alpha_r = \lambda_r / \rho c_p$ . On notera que cette fois-ci on est en train de garantir l'insensibilité à la convection pour tout point appartenant à la région  $0 \leq r \leq R_o$  et  $0 \leq z \leq L$  ; tandis que dans le dispositif de type plan chaud, on n'assure que l'insensibilité des points sur l'axe de symétrie de l'échantillon ( $r = 0$ ).

#### 6.4.4. Une méthode simple pour guider le choix des conditions expérimentales

Au regard des résultats des deux sections précédentes, on peut proposer la méthode suivante d'aide au choix des conditions expérimentales. Elle consiste à :

- Fixer la valeur du rapport « rayon de la sonde / rayon de l'échantillon » à  $R_o / R = 0.6$  afin de maximiser (indépendamment du choix de  $R/L$ ) les gradients thermiques dans la direction  $O\bar{r}$ .
- Fixer le rapport « rayon / épaisseur » de l'échantillon à  $R/L = 2(\lambda_r / \lambda_z)^{1/2}$  pour faire en sorte que les gradients thermiques dans les directions  $O\bar{z}$  et  $O\bar{r}$  ( $z = 0$ ) soient du même ordre de grandeur aux temps longs.
- Fixer les valeurs de  $T_L^*$ ,  $\Delta T^*$  et  $\beta^*$  (voir section 6.4.2) et déterminer les valeurs de  $L$ ,  $\varphi$  et  $t_f$  à partir des équations (6.90) et (6.91). On peut également fixer  $T_L^*$ ,  $\Delta T^*$  et  $t_f$ , puis déterminer  $L$ ,  $\varphi$  ; ou encore, fixer  $(T_L^*, \Delta T^*, \varphi)$  et calculer  $L$  et  $t_f$ .
- Vérifier que la valeur de  $R$  résultante vérifie le critère (6.106) rendant les observations insensibles (températures en face avant et face arrière &  $r \leq R_o$ ) aux échanges convectifs latéraux. Si ce n'est pas le cas, retourner au point 2 et augmenter la valeur du rapport  $R/L$ .

On propose ici un exemple d'application de la méthode pour tester sa pertinence. Nous rappelons qu'un bon choix des conditions expérimentales ( $L, R, R_o, \varphi$  et  $t_f$ ) doit aboutir à des réponses thermiques insensibles au coefficient de convection  $h$  et permettant l'estimation des trois paramètres caractérisant thermiquement l'échantillon :  $\lambda_z, \lambda_r$  et  $\rho c_p$ .

Comme pour le dispositif de type plan chaud, on considère trois échantillons représentatifs de l'ensemble des matériaux étudiés (les mêmes que dans la section 6.3.4). Les propriétés thermiques de ces échantillons sont données dans les colonnes 2 à 4 du tableau 6.5. Les matériaux orthotropes (échantillons n°2 et n°3) sont testés en faisant coïncider l'axe de compression de l'échantillon tantôt avec l'axe  $O\bar{z}$  du dispositif ( $\lambda_z = \lambda_{axiale \text{ échantillon}}$ , configuration a), tantôt avec l'axe  $O\bar{r}$  ( $\lambda_z = \lambda_{radiale \text{ échantillon}}$ , configuration b). Les dimensions des échantillons et les puissances de chauffage résultant de la méthode de choix des conditions expérimentales proposée sont reportées dans les colonnes 5 à 7 du même tableau. Elles ont été calculées en fixant  $T_L^* = 7^\circ C$ ,  $\Delta T^* = 3^\circ C$  et  $\beta^* = 0.04^\circ C.s^{-1}$ , comme dans l'exemple de la section 6.3.4 (plan chaud). Par ailleurs, on a respecté les égalités  $R_o/R = 0.6$ ,  $R/L = 2(\lambda_r/\lambda_z)^{1/2}$ . La valeur du coefficient d'échange convectif latéral utilisée est  $h = 5 W.m^{-2}.K^{-1}$ . Comme pour l'exemple du plan chaud, on notera que  $L$  est d'autant plus important que la conductivité thermique selon l'axe  $O\bar{z}$  du dispositif ( $\lambda_z$ ) est élevée. De même, la valeur de  $R$  augmente avec la valeur de la conductivité thermique selon l'axe  $O\bar{r}$  ( $\lambda_r$ ). En comparant ces résultats aux résultats du tableau 6.4 (plan chaud), on constate une diminution significative de la taille des échantillons et des puissances de chauffage à appliquer pour obtenir des réponses thermiques semblables aux temps longs (mêmes  $T_L^*$ ,  $\Delta T^*$  et  $\beta^*$ ). Aussi la durée des expériences en est réduite :  $t_f = 160s$  au lieu de  $t_f = 200s$ .

Echantillon / Configuration		$\rho c_p \times 10^6$ ( $J.m^{-3}.K^{-1}$ )	$\lambda_z$ ( $W.m^{-1}.K^{-1}$ )	$\lambda_r$ ( $W.m^{-1}.K^{-1}$ )	$L$ (m)	$R$ (m)	$P$ (W)
n°1		1.27	1.2	1.2	0.0073	0.0146	0.25
n°2	a	1.57	2	18.5	0.0085	0.05	4.46
	b		18.5	2	0.0258	0.0169	1.47
n°3	a	1.55	4.5	32	0.0128	0.0683	11.66
	b		32	4,5	0.0341	0.0256	4.37

Tableau 6.5 : Résultats du choix des conditions opératoires sur trois échantillons représentatifs des matériaux graphite/sel étudiés.

Nous illustrons à travers les résultats correspondant à l'échantillon n°2a ( $\lambda_r = 18.5 W.m^{-1}.K^{-1}$ ) l'efficacité de la méthode proposée pour décider de  $L, R, R_o$  et  $\varphi$ . La figure 6.17 montre l'évolution au cours du temps des températures en face avant ( $T(0,0,t)$ ) et en face arrière ( $T(0,L,t)$ ). Pour vérifier la pertinence de nos choix, nous allons analyser la sensibilité de  $T(0,0,t)$  et  $T(0,L,t)$ , ainsi

que celle de leurs dérivées respectives par rapport au temps, aux valeurs des paramètres physiques  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$ ,  $\rho c_p$  et  $h$ . Les figures 6.19 et 6.21 montrent les résultats de l'analyse de sensibilité paramétrique effectuée sur les réponses thermiques en face avant et arrière de l'échantillon ; tandis que les figures 6.20 et 6.22 montrent les résultats correspondant à l'analyse de sensibilité réalisée sur leurs dérivées temporelles. On constate que :

- Comme souhaité, la réponse thermique de l'échantillon est insensible au paramètre  $h$  et est sensible aux trois autres paramètres :  $\lambda_r$ ,  $\lambda_z$  et  $\rho c_p$ .
- Aux temps longs, les paramètres  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$  sont fortement corrélés entre eux, mais décorrélés par rapport à  $\rho c_p$ . Comme montré théoriquement, la différence de température  $\Delta T = T(0,0,t) - T(0,L,t)$  n'est sensible qu'aux valeurs des conductivités thermiques (fig. 6.18) ; tandis que les dérivées temporelles de  $T(0,0,t)$  et  $T(0,L,t)$  ne réagissent qu'aux perturbations de  $\rho c_p$ .
- Aux temps courts, quelle que soit la variable analysée (température, dérivée temporelle ou différence de température), le paramètre  $\lambda_r$  est décorrélé des deux autres. La réponse thermique en face avant permettrait d'identifier l'effusivité thermique  $E_z = \sqrt{\rho c_p \lambda_z}$  et la conductivité thermique  $\lambda_r$  (fig. 6.19 et fig. 6.20), tandis qu'à partir de l'observation en face arrière, on aurait la possibilité d'estimer  $\alpha_z = \lambda_z / \rho c_p$  et  $\lambda_r$  (fig. 6.21 et fig. 6.22).
- Les résultats dans les figures 6.20 et 6.22 sont particulièrement alléchants. Ils suggèrent une stratégie d'estimation en deux temps basée sur l'observation de la dérivée temporelle de la température en face arrière ou en face avant. D'abord, on estimerait  $\rho c_p$  aux temps longs ; ensuite ( $\rho c_p$  étant connue) on identifierait  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$  aux temps courts.

On rappelle qu'on a forcé tous les échantillons à suivre une même évolution thermique aux temps longs. De ce fait, les résultats des analyses de sensibilité paramétrique sont semblables pour tous les échantillons.

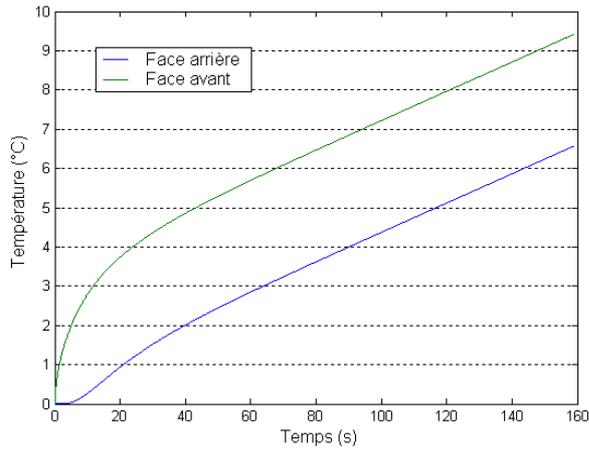


Figure 6.17 : Evolution thermique des échantillons en face avant et en face arrière.

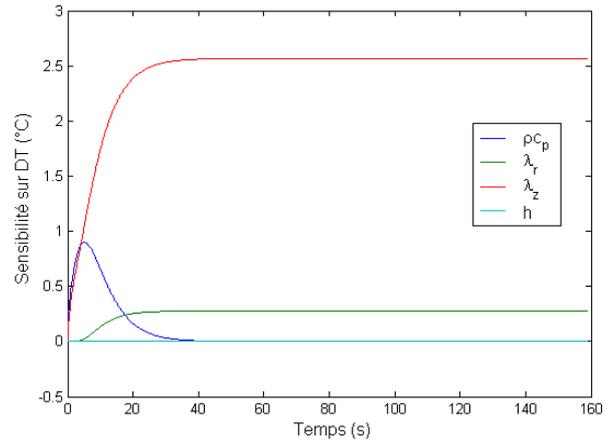


Figure 6.18 : Sensibilité de la différence de température entre les faces avant et arrière aux paramètres thermiques.

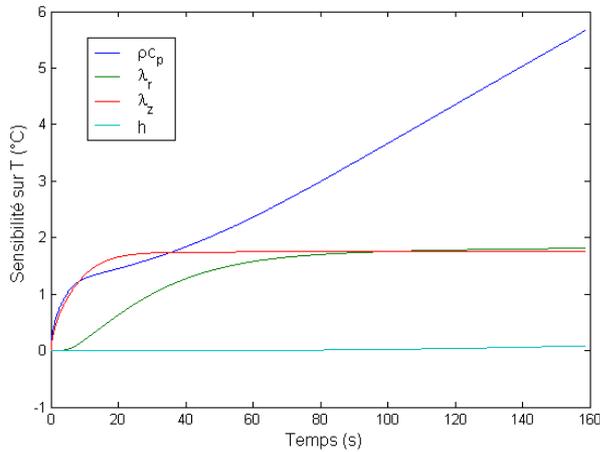


Figure 6.19 : Sensibilité de la température en face avant aux paramètres thermiques.

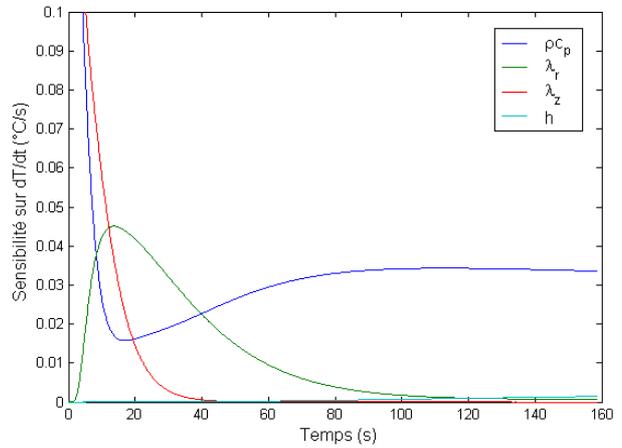


Figure 6.20 : Sensibilité de la dérivée par rapport au temps de la température en face avant aux paramètres thermiques.

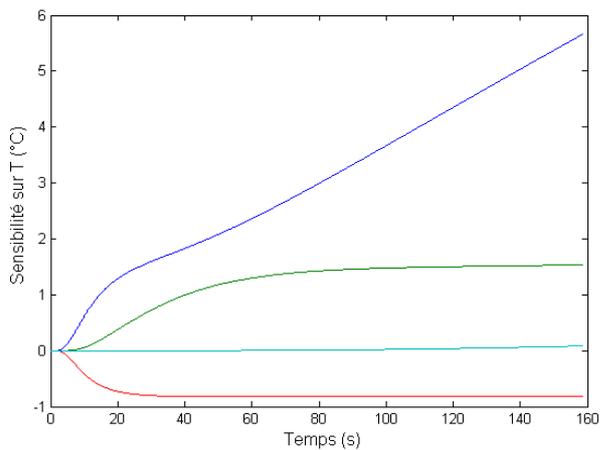


Figure 6.21 : Sensibilité de la température en face arrière aux paramètres thermiques.

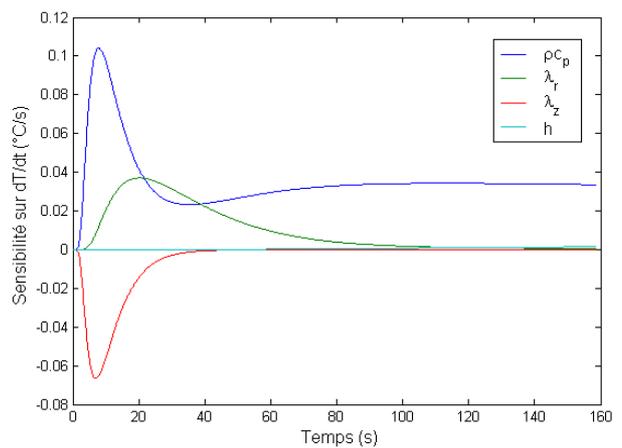


Figure 6.22 : Sensibilité de la dérivée par rapport au temps de la température en face arrière aux paramètres thermiques.

Nous avons également étudié les bénéfices potentiels de décaler le capteur en face avant par rapport au centre de l'échantillon. Ainsi, dans les mêmes conditions expérimentales qu'au préalable

(voir tableau 6.5), nous avons analysé la sensibilité aux paramètres thermiques du problème des températures (et de leurs dérivées temporelles) aux points  $(0.6R,0,t)$  et  $(0.8R,0,t)$ . Nous rappelons que les gradients thermiques maximaux dans la direction  $O\vec{r}$  sont attendus à  $(0.6R,0,t)$ . Les figures 6.23 à 6.26 montrent les résultats obtenus. On constate que l'observation en dehors du centre de la face avant n'apporte pas de possibilités d'estimation de paramètres supplémentaires. Tout au contraire, on observe une plus grande corrélation des paramètres  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$  aux temps courts. Ceci est dû au fait que depuis le tout début de l'expérience le gradient thermique dans la direction  $O\vec{r}$  aux points d'observation n'est pas nul, la réponse thermique sur  $(0.6R,0,t)$  et  $(0.8R,0,t)$  étant alors sensible aussi bien à  $\lambda_z$  qu'à  $\lambda_r$ . Par contre, un capteur situé au centre en face avant (gradient nul) mettra un certain temps à percevoir les flux d'énergie dans la direction radiale et permettra de mieux décorréler les effets de  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$ .

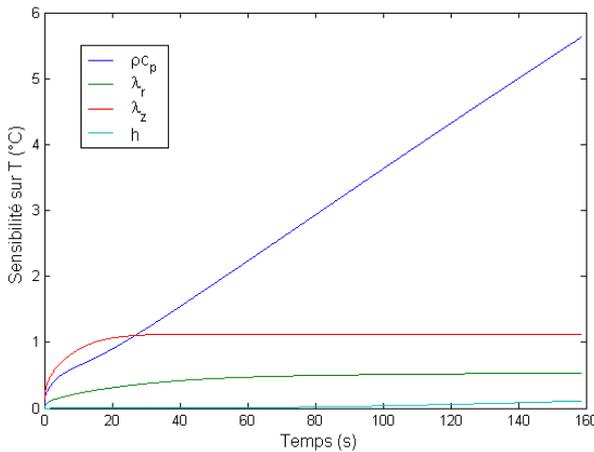


Figure 6.23 : Sensibilité de la température en face avant ( $r = R_o$ ) aux paramètres thermiques.

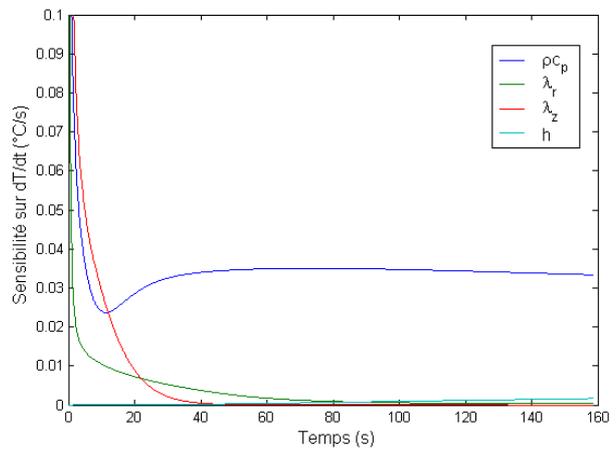


Figure 6.24 : Sensibilité de la dérivée par rapport au temps de la température en face avant ( $r = R_o$ ) aux paramètres thermiques.

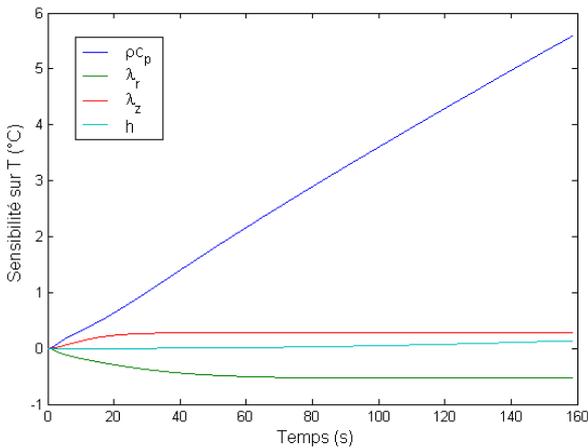


Figure 6.25 : Sensibilité de la température en face arrière ( $r = 0.8R$ ) aux paramètres thermiques.

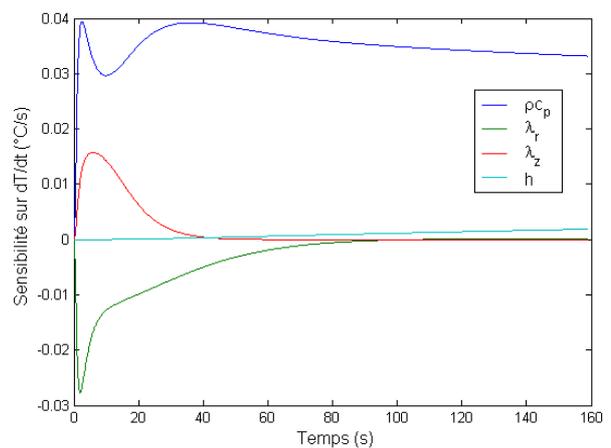


Figure 6.26 : Sensibilité de la dérivée par rapport au temps de la température en face arrière ( $r = 0.8R$ ) aux paramètres thermiques.

## 6.5. Conclusion

Nous avons proposé des solutions analytiques aux problèmes de transferts thermiques dans des dispositifs idéaux de type plan chaud et disque chaud. L'étude de ces solutions a permis de :

- Proposer des méthodes simples pour guider le choix « a priori » des conditions opératoires (dimensions de l'échantillon et de la sonde, puissance chauffante et durée de l'expérience) aboutissant à des expériences suffisamment informatives vis-à-vis de la caractérisation thermique de matériaux.
- Mettre en avant l'intérêt de passer de dispositifs de type milieu semi infini à des dispositifs à milieu fini. En plan chaud, l'identification simultanée de paramètres  $\lambda_z$  et  $\rho c_p$  devient de ce fait possible. En dispositifs de type disque chaud, ce sont les trois paramètres  $\lambda_r$ ,  $\lambda_z$  et  $\rho c_p$  qui deviendraient identifiables.
- Montrer les avantages potentiels des dispositifs de type disque chaud face aux dispositifs de type plan chaud. En effet, les premiers permettraient d'estimer simultanément  $\lambda_r$ ,  $\lambda_z$  et  $\rho c_p$  ; tandis qu'en plan chaud seules  $\lambda_z$  et  $\rho c_p$  sont identifiables. Par ailleurs, les dispositifs de type disque chaud sont moins exigeants en termes de taille des échantillons et de durée des expériences.

## **Chapitre 7: Analyse des méthodes de type sonde plane chauffante – Cas de dispositifs réels**

*Nous quittons le monde des dispositifs idéaux pour approcher une réalité où la sonde chauffante devient capacitive et résistive, l'isolation thermique n'est plus parfaite et des résistances thermiques apparaissent aux contacts entre l'échantillon et les autres éléments du dispositif (isolation et sonde). Compte tenu des résultats du chapitre précédent, seul les dispositifs à rayon et épaisseur finis et sans isolation thermique latérale seront considérés.*

*L'objectif premier de ce chapitre est de proposer un modèle de transferts permettant d'émuler l'évolution thermique de ces dispositifs. Il s'agit d'un outil mathématique fondamental pour la suite de nos travaux. Nous adopterons un formalisme unitaire permettant de décrire aussi bien les dispositifs de type plan chaud que ceux de type disque chaud. Dans la démarche de développement adoptée, la parcimonie jouera un rôle majeur car ces modèles seront utilisés par la suite pour estimer la valeur des propriétés thermiques des échantillons à partir de mesures. Autrement dit, ils subiront des inversions.*

*Le deuxième objectif du chapitre est d'étudier les possibilités offertes par les dispositifs réels vis-à-vis de l'estimation des propriétés thermiques de matériaux. Pour ce faire, des analyses de sensibilité paramétrique seront réalisées en utilisant les modèles de transferts proposés au préalable.*

*Dans la première section, nous présentons le détail des dispositifs étudiés, ainsi que les équations de conservation de l'énergie correspondantes. La section suivante est dédiée à la modélisation. Elle comporte une description générale du formalisme modale ainsi que les résultats de son application aux dispositifs étudiés. Dans la troisième section sont traités quelques aspects pratiques de la démarche de modélisation adoptée ; en particulier, nous mettrons en avant les aspects touchant à la parcimonie. Enfin, les deux dernières sections sont dédiées à l'étude des dispositifs réels de type plan chaud et disque chaud. Elles apporteront des informations précieuses pour l'estimation ultérieure des propriétés thermiques de matériaux à partir de mesures.*

## 7.1. Présentation des dispositifs et des équations de conservation de l'énergie

Le dispositif expérimental qui fait l'objet de cette étude est composé de trois cylindres de même rayon  $R$ , empilés comme montré dans la figure 5.4 du chapitre 5. Le cylindre du milieu est l'échantillon à tester, tandis que les deux autres sont des isolants thermiques. Une sonde plate chauffante est insérée entre l'isolant en bas du dispositif et l'échantillon. Si le rayon de la sonde est égal à celui de l'échantillon ( $R_o = R$ ), on parle d'un dispositif de type plan chaud. Par contre, si  $R_o < R$  on est en présence d'un dispositif de type disque chaud.

Les équations de conservation de l'énergie correspondant aux isolants et à l'échantillon sont données dans les tableaux 7.1 à 7.3. Il s'agit de trois problèmes de conduction dans un cylindre massif et fini. On exprime les équations dans un repère  $(O\vec{r}, O\vec{z})$  orthogonal propre à l'élément considéré. La direction  $O\vec{z}$  définit l'axe de symétrie du dispositif et le plan  $z = 0$  est celui qui contient la base du cylindre étudié (voir schéma ci-dessous).

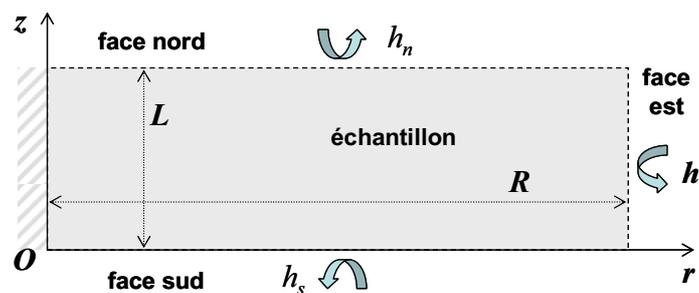


Figure 7.1 : Coupe droite des cylindres modélisés (isolants et échantillon)

Dans les trois cas,  $T(r, z, t)$  représente la température au point  $(r, z)$  et à l'instant  $t$  du cylindre étudié.  $\rho$  est la masse volumique de l'élément (échantillon ou isolant) et  $c_p$  est sa chaleur massique à pression constante. Les conductivités thermiques dans les directions  $O\vec{r}$  et  $O\vec{z}$  sont notées, respectivement,  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$  ( $\lambda_r = \lambda_z$  pour les isolants couramment utilisés). On note également  $L$  et  $R$  la hauteur et le rayon du cylindre.  $h$  est le coefficient d'échanges convectifs entre la surface latérale des cylindres et l'environnement du dispositif. Par contre, les coefficients  $h_n$  et  $h_s$  peuvent avoir deux significations distinctes : a) sur les faces extérieures du dispositif (ex. : face nord du cylindre isolant en haut du dispositif), ils représentent des coefficients de convection ; b) sur les frontières internes au dispositif (ex. : faces nord et sud de l'échantillon), ils représentent les inverses de résistances thermiques de contact. La signification des températures  $T_n(r, t)$  et  $T_s(r, t)$  qui apparaissent dans les équations aux limites sur les frontières internes est donnée dans le tableau 7.5.

Les équations de conservation ont été établies en supposant que :

- les propriétés thermiques ( $\rho c_p$ ,  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$ ) sont constantes, indépendantes du point et de la température ;

- les échanges convectifs aux frontières des éléments peuvent être représentés par l'intermédiaire de la loi de Newton avec des coefficients de convection  $h$  constants ;
- les résistances thermiques au contact entre deux éléments sont constantes et indépendantes du point ;
- la température de l'air autour du dispositif est constamment nulle. Pour des températures différentes de zéro,  $T(r, z, t)$  représente alors la différence entre la température du cylindre au point  $(r, z)$  et la température ambiante.

Par ailleurs, on considère que le dispositif est en équilibre thermique avec son environnement à l'état initial. Pour tous les éléments on a donc :  $T(r, z, 0) = 0, \forall r, z$ .

Equation de conservation de l'énergie dans le domaine intérieur ( $0 < z < L$  &  $0 < r < R, \forall t > 0$ ) :

$$\rho c_p \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial t} = \lambda_r \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} \right) + \lambda_z \frac{\partial^2 T(r, z, t)}{\partial z^2}$$

Conditions aux limites ( $\forall t > 0$ ) :

$$\begin{aligned} \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} = 0 \quad r = 0 \quad \forall z & & \lambda_z \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial z} + h_n T(r, z, t) = 0 \quad \forall r \quad z = L \\ \lambda_r \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} + h T(r, z, t) = 0 \quad r = R \quad \forall z & & -\lambda_z \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial z} + h_s T(r, z, t) = h_s T_s(r, t) \quad \forall r \quad z = 0 \end{aligned}$$

Tableau 7.1 : Equations de conservation de l'énergie du cylindre isolant en haut du dispositif.

Equation de conservation de l'énergie dans le domaine intérieur ( $0 < z < L$  &  $0 < r < R, \forall t > 0$ ) :

$$\rho c_p \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial t} = \lambda_r \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} \right) + \lambda_z \frac{\partial^2 T(r, z, t)}{\partial z^2}$$

Conditions aux limites ( $\forall t > 0$ ) :

$$\begin{aligned} \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} = 0 \quad r = 0 \quad \forall z & & \lambda_z \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial z} + h_n T(r, z, t) = h_n T_n(r, t) \quad \forall r \quad z = L \\ \lambda_r \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} + h T(r, z, t) = 0 \quad r = R \quad \forall z & & -\lambda_z \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial z} + h_s T(r, z, t) = h_s T_s(r, t) \quad \forall r \quad z = 0 \end{aligned}$$

Tableau 7.2 : Equations de conservation de l'énergie de l'échantillon.

Equation de conservation de l'énergie dans le domaine intérieur ( $0 < z < L$  &  $0 < r < R, \forall t > 0$ ) :

$$\rho c_p \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial t} = \lambda_r \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} \right) + \lambda_z \frac{\partial^2 T(r, z, t)}{\partial z^2}$$

Conditions aux limites ( $\forall t > 0$ ) :

$$\begin{aligned} \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} = 0 \quad r = 0 \quad \forall z & & \lambda_z \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial z} + h_n T(r, z, t) = h_n T_n(r, t) \quad \forall r \quad z = L \\ \lambda_r \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} + h T(r, z, t) = 0 \quad r = R \quad \forall z & & -\lambda_z \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial z} + h_s T(r, z, t) = 0 \quad \forall r \quad z = 0 \end{aligned}$$

Tableau 7.3 : Equations de conservation de l'énergie du cylindre isolant en bas du dispositif.

La sonde chauffante est considérée comme étant un film mince dont la température est uniforme à tout instant. On note  $(mc)$  sa capacité thermique surfacique. L'équation de conservation de l'énergie correspondante est donnée dans le tableau 7.4. Les coefficients  $h_n$  et  $h_s$  sont, respectivement, l'inverse de la résistance de contact entre la sonde et l'échantillon et l'inverse de la résistance de contact entre la sonde et l'isolant en bas du dispositif. On les considère constantes et indépendantes du point.  $\varphi$  représente la densité de flux d'énergie dégagée par effet Joule au sein de la sonde. Il est supposé uniforme et peut s'écrire :  $\varphi = P / \pi R_o^2$ , en fonction de la puissance de chauffage appliquée  $P$  et du rayon de la sonde  $R_o$ .

<p>Equation de conservation de l'énergie dans la sonde (<math>0 &lt; r &lt; R_o, \forall t &gt; 0</math>) :</p> $\pi R_o^2 (mc) \frac{dT(t)}{dt} = \pi R_o^2 \varphi(t) - 2\pi h_n \int_0^{R_o} r(T(t) - T_n(r, t)) dr - 2\pi h_s \int_0^{R_o} r(T(t) - T_s(r, t)) dr$ <p>ou encore :</p> $(mc) \frac{dT(t)}{dt} + (h_n + h_s)T(t) = \varphi(t) + \frac{2h_n}{R_o^2} \int_0^{R_o} r T_n(r, t) dr + \frac{2h_s}{R_o^2} \int_0^{R_o} r T_s(r, t) dr$
--

Tableau 7.4 : Equation de conservation de l'énergie de la sonde chauffante.

Enfin les équations dans le tableau 7.5 assurent la cohérence de l'ensemble. On les écrit en supposant que les coefficients  $h_s$  et  $h_n$  des faces qui se touchent (ex. :  $h_s$  en face sud de l'isolant en haut et  $h_n$  en face nord de l'échantillon) sont identiques.

Face sud de l'isolant en haut	$T_s(r, t) = T_{\text{échantillon}}(r, z = L, t), 0 \leq r \leq R$
Face nord de l'échantillon	$T_n(r, t) = T_{\text{isolant en haut}}(r, z = 0, t), 0 \leq r \leq R$
Face sud de l'échantillon	$T_s(r, t) = T_{\text{sonde}}(t), 0 \leq r \leq R_o$ $T_s(r, t) = T_{\text{isolant en bas}}(r, z = L, t), R_o < r \leq R$
Face nord de l'isolant en bas	$T_n(r, t) = T_{\text{sonde}}(t), 0 \leq r \leq R_o$ $T_n(r, t) = T_{\text{échantillon}}(r, z = 0, t), R_o < r \leq R$

Tableau 7.5 : Equations de fermeture.

## 7.2. Formulation modale du problème

L'analyse modale du comportement de systèmes gouvernés par des équations aux dérivées partielles trouve ses racines dans la méthode de séparation de variables. Si son nom évoque essentiellement la mécanique vibratoire, elle est actuellement utilisée dans des domaines très variés de la physique. Dans le domaine de la thermique, elle est aussi connue sous le nom de théorie de la transformation intégrale (cf. [97, 98]). En France, tout au long des années 80 et 90, le Centre d'Énergétique de l'École des Mines de Paris, puis le Groupe Informatique et Systèmes Énergétiques de l'École des Ponts et Chaussées, contribueront de façon significative à son développement (cf. [99, 100]).

Le formalisme modal repose sur l'analyse spectrale des opérateurs différentiels ou intégral-différentiels associés aux équations de conservation. Il s'agit d'un cadre formel permettant la résolution de problèmes aux dérivées partielles de toute dimension, qu'ils soient homogènes ou non. On montre que la décomposition spectrale des opérateurs mentionnés aboutit à un ensemble de fonctions propres définissant une base complète dans le domaine spatial du problème étudié. Le champ de température peut alors se décomposer de manière unique sur cette base, s'exprimant comme une combinaison linéaire des fonctions propres. L'intérêt d'une telle démarche est multiple: a) elle permet de transformer un problème aux dérivées partielles en un problème aux dérivées ordinaires de dimension infinie mais fournissant des solutions formelles des problèmes étudiés; b) en général, un nombre très réduit d'éléments propres suffit à reconstituer la solution recherchée avec précision; c) les éléments propres permettent souvent de mettre en relief des traits caractéristiques du système étudié sans recourir à la simulation.

### 7.2.1. Rappel sur le principe de la méthode modale

Nous rappelons ici les principes de la méthode modale à travers un exemple simple de conduction. Pour des problèmes de diffusion couplée de masse et de chaleur, on peut se reporter à [98]. Pour des problèmes de diffusion avec transport, on peut s'adresser à [101,102]. Enfin, le lecteur trouvera dans [100] des formulations alternatives à la méthode modale reposant sur la décomposition spectrale de certains opérateurs intégraux associés aux solutions fondamentales des problèmes de diffusion.

On considère ici le problème de transferts thermiques par conduction suivant :

$$\begin{aligned} \frac{\partial T(M,t)}{\partial t} &= \alpha \nabla^2 T(M,t) & \forall M \in \Omega, \forall t > 0 \\ -\lambda_i \vec{\nabla} T(M,t) \cdot \vec{n}_i + h_i T(M,t) &= f_i(M,t) & \forall M \in \partial\Omega_i, \forall t > 0 \end{aligned} \quad (7.1)$$

Il est défini sur un domaine géométrique borné  $\Omega \cup \partial\Omega_{i=1\dots s}$ , où  $\Omega$  et  $\partial\Omega_{i=1\dots s}$  désignent respectivement l'intérieur et les frontières du domaine.  $T(M,t)$  représente la température au point  $M$  à l'instant  $t$ .  $\nabla^2$  est l'opérateur de Laplace et  $\vec{\nabla}$  l'opérateur gradient,  $\vec{n}_i$  étant un vecteur unitaire normal à  $\partial\Omega_i$  sur  $M$  et orienté vers l'extérieur du domaine. Par simplicité, on supposera  $T(M,0) = 0$  en tout point.  $\alpha$  représente la diffusivité thermique du milieu, tandis que  $\lambda_i$  et  $h_i$  sont des paramètres des conditions aux limites (ex. : une conductivité thermique et un coefficient d'échanges convectifs). Les conditions aux limites du problème deviennent des conditions de type Newman en faisant  $h_i = 0$  et de type Dirichlet pour  $\lambda_i = 0$ .

Aux équations (7.1), on peut associer le problème aux valeurs et fonctions propres suivant :

$$\begin{aligned} \lambda \nabla^2 V_m(M) + \gamma_m^2 V_m(M) &= 0 & \forall M \in \Omega, \forall t > 0 \\ -\lambda_i \vec{\nabla} V_m(M) \cdot \vec{n}_i + h_i V_m(M) &= 0 & \forall M \in \partial\Omega_i, \forall t > 0 \end{aligned} \quad (7.2)$$

où  $V_m(M)$  représente la fonction propre correspondant à la valeur propre  $\gamma_m^2$ . On peut montrer (cf. [94]) que l'ensemble de fonctions propres  $\{V_m(M)\}_{m=1,\dots,\infty}$  définit une base orthogonale complète sur  $\Omega$  (base modale par la suite). On a alors :

$$\int_{\Omega} V_m(M)V_n(M)d\Omega = \begin{cases} 0 & m \neq n \\ N(\gamma_m) & m = n \end{cases} \quad \text{avec : } N(\gamma_m) = \int_{\Omega} V_m^2(M)d\Omega \quad (7.3)$$

On travaillera par la suite avec les fonctions propres normalisées :

$$V_m(M) \leftarrow \frac{V_m(M)}{\sqrt{N(\gamma_m)}} \quad (7.4)$$

Toute fonction analytique définie sur  $\Omega$ , dérivable à l'ordre un et à carré sommable, pourra être décomposée de manière unique sur la base modale. De ce fait, on peut écrire :

$$T(M,t) = \sum_{m=1}^{\infty} X_m(t)V_m(M) \quad (7.5)$$

où les coefficients de décomposition  $X_m(t)$ , aussi appelés états modaux, sont définis par :

$$X_m(t) = \int_{\Omega} V_m(M)T(M,t)d\Omega \quad (7.6)$$

En cas de problèmes de transferts non homogènes, la série (7.5) n'est pas toujours uniformément convergente. Pour contourner cette difficulté, Ölçer [103] proposa en 1964 une écriture alternative du problème (7.1). Elle consiste à exprimer le champ de température comme étant la somme d'un champ pseudo – permanent  $T^s(M,t)$ , défini par les équations (7.7), et d'un champ dynamique  $T^d(M,t)$ , dont on peut montrer aisément que son évolution est gouvernée par les équations (7.8) :

$$\begin{aligned} 0 &= \nabla^2 T^s(M,t) & \forall M \in \Omega, \forall t > 0 \\ -\lambda_i \vec{\nabla} T^s(M,t) \cdot \vec{n}_i + h_i T^s(M,t) &= f_i(M,t) & \forall M \in \partial\Omega_i, \forall t > 0 \end{aligned} \quad (7.7)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial T^d(M,t)}{\partial t} &= \alpha \nabla^2 T^d(M,t) - \frac{\partial T^s(M,t)}{\partial t} & \forall M \in \Omega, \forall t > 0 \\ -\lambda_i \vec{\nabla} T^d(M,t) \cdot \vec{n}_i + h_i T^d(M,t) &= 0 & \forall M \in \partial\Omega_i, \forall t > 0 \end{aligned} \quad (7.8)$$

Le champ dynamique  $T^d(M,t)$  étant issu d'un problème homogène, on constate alors que la série :

$$T^d(M,t) = \sum_{m=1}^{\infty} X_m(t)V_m(M) \quad \text{avec} \quad X_m(t) = \int_{\Omega} V_m(M)T^d(M,t)d\Omega \quad (7.9)$$

est uniformément et rapidement convergente. Par ailleurs, en tenant compte de l'orthogonalité de la base modale et en projetant les équations (7.8) sur celle-ci, on montre que l'évolution au cours du temps des états modaux est régie par un ensemble infini d'équations différentielles ordinaires découplées les unes des autres (cf. [97]):

$$\frac{dX_m(t)}{dt} = -\alpha\gamma_m^2 X_m(t) - \int_{\Omega} V_m(M) \frac{\partial T^s(M,t)}{\partial t} d\Omega \quad (7.10)$$

A son tour, le champ pseudo – permanent  $T^s(M, t)$  peut s'exprimer (cf. [97]) :

$$T^s(M, t) = \sum_{m=1}^{\infty} \frac{V_m(M)}{\gamma_m^2} \int_{\partial\Omega_i} \frac{V_m(M')}{\lambda_i} \Big|_{\partial\Omega_i} f_i(M', t) ds_i \quad (7.11)$$

En reportant l'expression (7.11) dans l'équation (7.10) et en tenant compte des propriétés d'orthogonalité de la base modale, on obtient :

$$\frac{dX_m(t)}{dt} = -\alpha\gamma_m^2 X_m(t) - \sum_{i=1}^s \int_{\partial\Omega_i} \frac{V_m(M)}{\gamma_m^2 \lambda_i} \Big|_{\partial\Omega_i} \frac{df_i(M, t)}{dt} ds_i \quad (7.12)$$

L'écriture modale du problème (7.1) se résume donc à :

$$T(M, t) = T^s(M, t) + T^d(M, t)$$

$$T^s(M, t) = \sum_{m=1}^{\infty} V_m(M) \bar{f}_{m,i}(t) ; \quad T^d(M, t) = \sum_{m=1}^{\infty} V_m(M) X_m(t) \quad (7.13)$$

avec :

$$\frac{dX_m(t)}{dt} = -\alpha\gamma_m^2 X_m(t) - \sum_{i=1}^s \frac{d\bar{f}_{m,i}(t)}{dt} ; \quad \bar{f}_{m,i}(t) = \frac{1}{\gamma_m^2} \int_{\partial\Omega_i} \frac{V_m(M')}{\lambda_i} \Big|_{\partial\Omega_i} f_i(M', t) ds_i$$

Nous rappelons que pour des conditions aux limites de type Dirichlet, on remplace

$$\frac{V_m(M')}{\lambda_i} \Big|_{\partial\Omega_i} \quad \text{par} \quad \bar{\nabla} V_m(M') \Big|_{\partial\Omega_i} \cdot \bar{n}_i \quad (7.14)$$

dans l'équation donnant  $\bar{f}_{m,i}(t)$  (cf. [94]).

## 7.2.2. Modèles modaux des composants

Nous appliquons ici la méthode modale aux trois cylindres (isolants et échantillon) du dispositif expérimental. Les transferts au sein des isolants n'étant que des cas particuliers du problème de transferts dans l'échantillon, nous illustrons la démarche de modélisation adoptée à partir de ce dernier. Nous réécrivons les équations dans le tableau 7.2 de la façon suivante ( $\forall t > 0$ ) :

$\frac{1}{\alpha_r} \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} \right) + \varepsilon^2 \frac{\partial^2 T(r, z, t)}{\partial z^2} \quad 0 < z < L \ \& \ 0 < r < R \quad (7.15)$	
$\frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} = 0 \quad r = 0 \quad \forall z$ $\frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} + HT(r, z, t) = 0 \quad r = R \quad \forall z$	$-\frac{\partial T(r, z, t)}{\partial z} + H_s T(r, z, t) = f_s(r, t) \quad \forall r \quad z = 0$ $\frac{\partial T(r, z, t)}{\partial z} + H_n T(r, z, t) = f_n(r, t) \quad \forall r \quad z = L$

où on note :

$$\alpha_r = \frac{\lambda_r}{\rho c_p}, \quad \varepsilon^2 = \frac{\lambda_z}{\lambda_r}, \quad H = \frac{h}{\lambda_r}, \quad f_s = H_s T_s(r, t) \quad \text{et} \quad f_n = H_n T_n(r, t) \quad (7.16)$$

Sans préjuger des couplages ultérieurs des cylindres entre eux et avec la sonde,  $H_s$  et  $H_n$  sont considérés comme étant des paramètres des conditions aux limites dont la valeur peut être fixée arbitrairement. Ce faisant, on découple les modèles des cylindres de leur environnement et on parlera de modèles locaux des isolants et de l'échantillon. L'intérêt de cette démarche, que l'on comprendra mieux dans la section 7.3, réside dans la modularité et les possibilités de parcimonie qui en découlent.

### La base modale

Le problème aux valeurs et fonctions propres associé aux équations (7.15) est :

$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial V_{mp}(r, z)}{\partial r} \right) + \varepsilon^2 \frac{\partial^2 V_{mp}(r, z)}{\partial z^2} = -\gamma_{mp}^2 V_{mp}(r, z) \quad 0 < z < L \quad \& \quad 0 < r < R \quad (7.17)$	
$\frac{\partial V_{mp}(r, z)}{\partial r} = 0 \quad r = 0 \quad \forall z$	$-\frac{\partial V_{mp}(r, z)}{\partial z} + H_s V_{mp}(r, z) = 0 \quad \forall r \quad z = 0$
$\frac{\partial V_{mp}(r, z)}{\partial r} + H V_{mp}(r, z) = 0 \quad r = R \quad \forall z$	$\frac{\partial V_{mp}(r, z)}{\partial z} + H_n V_{mp}(r, z) = 0 \quad \forall r \quad z = L$

Pour  $\varepsilon = 1$ , la solution de ce problème est classique (cf. [94]). Elle est donnée par :

$$V_{mp}(r, z) = \psi(\beta_m, r) \phi(\eta_p, z) \quad \text{avec} \quad \gamma_{mp}^2 = \beta_m^2 + \eta_p^2 \quad (7.18)$$

avec :

$$\psi(\beta_m, r) = J_o(\beta_m r) \quad \frac{1}{N(\beta_m)} = \frac{2}{J_o^2(\beta_m R) R^2 (\beta_m^2 + H^2)} \quad (7.19)$$

$$\phi(\eta_p, z) = \eta_p \cos(\eta_p z) + H_s \sin(\eta_p z) \quad \frac{1}{N(\eta_p)} = 2 \left[ (\eta_p^2 + H_s^2) \left( L + \frac{H_n}{\eta_p^2 + H_n^2} \right) + H_s \right]^{-1} \quad (7.20)$$

où  $\beta_m$  et  $\eta_p$  sont les racines positives des équations :

$$\beta_m J_o'(\beta_m R) + H J_o(\beta_m R) = 0 \quad \tan(\eta_p L) = \frac{\eta_p (H_s + H_n)}{\eta_p^2 - H_s H_n} \quad (7.21)$$

Nous montrons dans l'annexe A1, que la seule modification à apporter aux équations (7.18) à (7.21) quand  $\varepsilon \neq 1$  est :

$$\gamma_{mp}^2 = \beta_m^2 + \varepsilon^2 \eta_p^2 \quad (7.22)$$

les fonctions propres restant inchangées.

Comme précédemment, nous travaillerons par la suite avec les fonctions propres normalisées :

$$\psi(\beta_m, r) \leftarrow \frac{\psi(\beta_m, r)}{\sqrt{N(\beta_m)}} \quad \phi(\eta_p, z) \leftarrow \frac{\phi(\eta_p, z)}{\sqrt{N(\eta_p)}} \quad V_{mp}(r, z) \leftarrow \frac{\psi(\beta_m, r) \phi(\eta_p, z)}{N(\beta_m) N(\eta_p)} \quad (7.23)$$

On peut alors écrire :

$$\int_{r=0}^R r \psi(\beta_m, r) \psi(\beta_k, r) dr = \begin{cases} 0 & m \neq k \\ 1 & m = k \end{cases} \quad \int_{z=0}^L \phi(\eta_p, r) \phi(\eta_k, r) dz = \begin{cases} 0 & m \neq k \\ 1 & m = k \end{cases} \quad (7.24)$$

On remarquera que pour un dispositif de type plan chaud sans échanges convectifs latéraux, les éléments de la base modale deviennent :  $\gamma_p^2 = \eta_p^2$  et  $V_p(z) = \phi(\eta_p, z)$ .

### Le régime pseudo - permanent

Les équations définissant le régime pseudo – permanent d'évolution associé aux équations (7.15) sont ( $\forall t > 0$ ) :

$0 = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T^s(r, z, t)}{\partial r} \right) + \varepsilon^2 \frac{\partial^2 T^s(r, z, t)}{\partial z^2} \quad 0 < z < L \ \& \ 0 < r < R, \ \forall t > 0 \quad (7.25)$	
$\frac{\partial T^s(r, z, t)}{\partial r} = 0 \quad r = 0 \quad \forall z$	$-\frac{\partial T^s(r, z, t)}{\partial z} + H_s T^s(r, z, t) = f_s(r, t) \quad \forall r \quad z = 0$
$\frac{\partial T^s(r, z, t)}{\partial r} + H T^s(r, z, t) = 0 \quad r = R \quad \forall z$	$\frac{\partial T^s(r, z, t)}{\partial z} + H_n T^s(r, z, t) = f_n(r, t) \quad \forall r \quad z = L$

En utilisant la méthode de la transformation intégrale (voir Annexe A2), on peut montrer que la solution aux équations (7.25) est :

$$T^s(r, z, t) = \sum_{mp} V_{mp}(r, z) \bar{f}_{mp}(t) = \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \psi(\beta_m, r) \phi(\eta_p, z) \bar{f}_{mp}(t) \quad (7.26)$$

avec :

$$\bar{f}_{mp}(t) = \frac{\phi(\eta_p, 0)}{\beta_m^2 + \varepsilon^2 \eta_p^2} \bar{f}_{m,s}(t) + \frac{\phi(\eta_p, L)}{\beta_m^2 + \varepsilon^2 \eta_p^2} \bar{f}_{m,n}(t) \quad (7.27)$$

$$\bar{f}_{m,s}(t) = \int_{r=0}^R r \psi(\beta_m, r) f_s(r, t) dr ; \quad \bar{f}_{m,n}(t) = \int_{r=0}^R r \psi(\beta_m, r) f_n(r, t) dr \quad (7.28)$$

On notera que pour  $f_s(r, t)$  et/ou  $f_n(r, t)$  indépendants du point, les équations (7.28) deviennent :

$$\bar{f}_{m,s}(t) = \frac{R J_1(\beta_m R)}{\beta_m} f_s(t) \quad \bar{f}_{m,n}(t) = \frac{R J_1(\beta_m R)}{\beta_m} f_n(t) \quad (7.28a)$$

Comme démontré dans l'Annexe A3, la solution des équations (7.25) peut également s'écrire :

$$T^s(r, z, t) = \sum_{m=1}^{\infty} \psi(\beta_m, r) \Gamma_1(\beta_m, z) \bar{f}_{m,s}(t) + \sum_{m=1}^{\infty} \psi(\beta_m, r) \Gamma_2(\beta_m, z) \bar{f}_{m,n}(t) \quad (7.29)$$

avec :

$$\Gamma_1(\beta_m, z) = A_m \left[ \cosh \left[ \left( \frac{\beta_m}{\varepsilon} \right) (L - z) \right] + \left( \frac{\beta_m}{\varepsilon} \right)^{-1} H_n \sinh \left[ \left( \frac{\beta_m}{\varepsilon} \right) (L - z) \right] \right] \quad (7.30)$$

$$\Gamma_2(\beta_m, z) = A_m \left[ \cosh \left[ \left( \frac{\beta_m}{\varepsilon} \right) z \right] + \left( \frac{\beta_m}{\varepsilon} \right)^{-1} H_s \sinh \left[ \left( \frac{\beta_m}{\varepsilon} \right) z \right] \right] \quad (7.31)$$

et

$$A_m = \left[ \left\{ \left( \frac{\beta_m}{\varepsilon} \right) + \left( \frac{\beta_m}{\varepsilon} \right)^{-1} H_s H_n \right\} \sinh \left( \frac{\beta_m L}{\varepsilon} \right) + (H_s + H_n) \cosh \left( \frac{\beta_m L}{\varepsilon} \right) \right]^{-1} \quad (7.32)$$

L'expression (7.26) est plus appropriée pour les démonstrations qui suivent, tandis que l'équation (7.29) facilitera les calculs.

### Le régime dynamique

Les équations qui gouvernent l'évolution du régime dynamique associé aux équations (7.15) sont ( $\forall t > 0$ ) :

$\frac{1}{\alpha_r} \frac{\partial T^d(r, z, t)}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T^d(r, z, t)}{\partial r} \right) + \varepsilon^2 \frac{\partial^2 T^d(r, z, t)}{\partial z^2} - \frac{1}{\alpha_r} \frac{\partial T^s(r, z, t)}{\partial t} \quad \begin{array}{l} 0 < z < L \\ 0 < r < R \end{array} \quad (7.33)$	
$\frac{\partial T^d(r, z, t)}{\partial r} = 0 \quad r = 0 \quad \forall z$	$-\frac{\partial T^d(r, z, t)}{\partial z} + H_s T^d(r, z, t) = 0 \quad \forall r \quad z = 0$
$\frac{\partial T^d(r, z, t)}{\partial r} + H T^d(r, z, t) = 0 \quad r = R \quad \forall z$	$\frac{\partial T^d(r, z, t)}{\partial z} + H_n T^d(r, z, t) = 0 \quad \forall r \quad z = L$

L'application de la méthode modale conduit à écrire la solution de ce problème comme étant une combinaison linéaire des fonctions propres de la base modale :

$$T^d(r, z, t) = \sum_{mp} V_{mp}(r, z) X_{mp}(t) = \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \psi(\beta_m, r) \phi(\eta_p, z) X_{mp}(t) \quad (7.34)$$

On montre en Annexe A4 que l'évolution temporelle des états modaux est gouvernée par des équations différentielles ordinaires de la forme :

$$\frac{dX_{mp}(t)}{dt} = -\alpha_r \gamma_{mp}^2 X_{mp}(t) - \frac{\phi(\eta_p, 0) \bar{f}_{m,s}(t)}{\gamma_{mp}^2} \frac{d\bar{f}_{m,s}(t)}{dt} - \frac{\phi(\eta_p, L) \bar{f}_{m,n}(t)}{\gamma_{mp}^2} \frac{d\bar{f}_{m,n}(t)}{dt} \quad (7.35)$$

où  $\bar{f}_{m,s}(t)$  et  $\bar{f}_{m,n}(t)$  sont données par les équations (7.28). Les équations (7.35) sont appelées équations d'état.

### Les variables de raccordement et les équations de sortie

L'évolution en temps du champ de température dans le cylindre est donnée par la somme des champs pseudo – permanent (eq. (7.29)) et dynamique (eq. (7.34)) :

$T(r, z, t) = T^s(r, z, t) + T^d(r, z, t)$ . Cependant, seule l'observation de la température à quelques endroits du dispositif va nous intéresser. Il s'agit :

- Des températures aux faces nord  $T(r, L, t)$  et sud  $T(r, 0, t)$ , ainsi que leurs dérivées spatiales  $\partial T(r, z, t) / \partial z|_{z=L}$  et  $\partial T(r, z, t) / \partial z|_{z=0}$ . Comme nous le verrons plus tard, ces informations seront nécessaires à la construction du modèle du dispositif (modèle global). Ces grandeurs seront appelées variables de raccordement ou de couplage.

- Des températures aux points de mesure. Autrement dit, la température au centre de la face nord  $T(0,L,t)$  et la température au centre de la face sud  $T(0,0,t)$ . Ces grandeurs sont nommées « sorties ».

A partir des équations (7.29) et (7.34), on obtient les équations des variables de raccordement suivantes :

$$\begin{aligned}
 T(r,0,t) &= \sum_{m=1}^{\infty} \psi(\beta_m, r) \left\{ \Gamma_1(\beta_m, 0) \bar{f}_{m,s}(t) + \Gamma_2(\beta_m, 0) \bar{f}_{m,n}(t) \right\} + \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \psi(\beta_m, r) \phi(\eta_p, 0) X_{mp}(t) \\
 T(r,L,t) &= \sum_{m=1}^{\infty} \psi(\beta_m, r) \left\{ \Gamma_1(\beta_m, L) \bar{f}_{m,s}(t) + \Gamma_2(\beta_m, L) \bar{f}_{m,n}(t) \right\} + \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \psi(\beta_m, r) \phi(\eta_p, L) X_{mp}(t)
 \end{aligned} \quad (7.36)$$

$$\begin{aligned}
 \partial T(r,z,t) / \partial z \Big|_{z=0} &= \sum_{m=1}^{\infty} \psi(\beta_m, r) \left\{ \Gamma_1'(\beta_m, 0) \bar{f}_{m,s}(t) + \Gamma_2'(\beta_m, 0) \bar{f}_{m,n}(t) \right\} + \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \psi(\beta_m, r) \phi'(\eta_p, 0) X_{mp}(t) \\
 \partial T(r,z,t) / \partial z \Big|_{z=L} &= \sum_{m=1}^{\infty} \psi(\beta_m, r) \left\{ \Gamma_1'(\beta_m, L) \bar{f}_{m,s}(t) + \Gamma_2'(\beta_m, L) \bar{f}_{m,n}(t) \right\} + \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \psi(\beta_m, r) \phi'(\eta_p, L) X_{mp}(t)
 \end{aligned}$$

où

$$\begin{cases}
 \phi'(\eta_p, z) \equiv d\phi(\eta_p, z) / dz = \eta_p \left\{ -\eta_p \sin(\eta_p z) + H_s \cos(\eta_p z) \right\} / \sqrt{N(\beta_m)} \\
 \Gamma_1'(\beta_m, z) \equiv d\Gamma_1(\beta_m, z) / dz = A_m \left[ -\sinh \left[ \left( \frac{\beta_m}{\varepsilon} \right) (L-z) \right] - H_n \cosh \left[ \left( \frac{\beta_m}{\varepsilon} \right) (L-z) \right] \right] \\
 \Gamma_2'(\beta_m, z) \equiv d\Gamma_2(\beta_m, z) / dz = A_m \left[ \sinh \left[ \left( \frac{\beta_m}{\varepsilon} \right) z \right] + H_s \cosh \left[ \left( \frac{\beta_m}{\varepsilon} \right) z \right] \right]
 \end{cases} \quad (7.37)$$

Les équations de sortie sont alors données par :

$$\begin{aligned}
 T(0,0,t) &= \sum_{m=1}^{\infty} \psi(\beta_m, 0) \left\{ \Gamma_1(\beta_m, 0) \bar{f}_{m,s}(t) + \Gamma_2(\beta_m, 0) \bar{f}_{m,n}(t) \right\} + \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \psi(\beta_m, 0) \phi(\eta_p, 0) X_{mp}(t) \\
 T(0,L,t) &= \sum_{m=1}^{\infty} \psi(\beta_m, 0) \left\{ \Gamma_1(\beta_m, L) \bar{f}_{m,s}(t) + \Gamma_2(\beta_m, L) \bar{f}_{m,n}(t) \right\} + \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \psi(\beta_m, 0) \phi(\eta_p, L) X_{mp}(t)
 \end{aligned} \quad (7.38)$$

Pour les calculs ultérieurs, on notera que :

$$\begin{aligned}
 \psi(\beta_m, 0) &= 1 / \sqrt{N(\beta_m)} ; & \psi'(\beta_m, 0) &= 0 ; & \phi(\eta_p, 0) &= \eta_p / \sqrt{N(\eta_p)} ; & \phi'(\eta_p, 0) &= H_s \eta_p / \sqrt{N(\eta_p)} \\
 \Gamma_1(\beta_m, L) &= A_m ; & \Gamma_2(\beta_m, 0) &= A_m ; & \Gamma_1'(\beta_m, L) &= -A_m H_n ; & \Gamma_2'(\beta_m, 0) &= A_m H_s
 \end{aligned}$$

### Les modèles modaux locaux

Pour chacun des cylindres du dispositif (2 isolants et 1 échantillon) on dispose donc d'un modèle modal local qui comporte :

- un nombre infini d'équations d'état (eq. (7.35)) donnant l'évolution en temps des états modaux ;
- des équations de raccordement (eq. (7.36)) représentant les températures aux faces nord  $T(r,L,t)$  et sud  $T(r,0,t)$ , ainsi que leurs dérivées  $\partial T(r,z,t) / \partial z \Big|_{z=L}$  et  $\partial T(r,z,t) / \partial z \Big|_{z=0}$  ;
- des équations de sortie (eq. (7.38)) donnant la température au centre de la face nord  $T(0,L,t)$  et la température au centre de la face sud  $T(0,0,t)$ .

Quant à la sonde, on peut réécrire les équations dans le tableau 7.4 sous la forme :

$$\begin{cases} \frac{dX(t)}{dt} = -\left(\frac{h_n + h_s}{mc}\right)X(t) - \frac{1}{h_n + h_s} \left( \frac{d\varphi(t)}{dt} + h_n \frac{df_n(t)}{dt} + h_s \frac{df_s(t)}{dt} \right) \\ T(t) = X(t) + \frac{1}{h_n + h_s} [\varphi(t) + h_n f_n(t) + h_s f_s(t)] \end{cases} \quad (7.39)$$

avec :

$$f_n(t) = \frac{2}{R_o^2} \int_{r=0}^{R_o} r T_n(r,t) dr; \quad f_s(t) = \frac{2}{R_o^2} \int_{r=0}^{R_o} r T_s(r,t) dr \quad (7.40)$$

### 7.2.3. Modèle du dispositif

Pour obtenir le modèle du dispositif (modèle global), il est nécessaire de coupler les modèles locaux des cylindres (isolants et échantillon) et de la sonde entre eux. Autrement dit, il faut trouver les fonctions  $f_s(r,t)$  et  $f_n(r,t)$  des modèles locaux qui permettent de vérifier les conditions aux limites données dans les tableaux 7.1 à 7.3, ainsi que les équations explicitées dans le tableau 7.5. En notant respectivement  $T_{ih}$ ,  $T_{ec}$ ,  $T_{ib}$  et  $T_{sd}$ , les champs de température dans l'isolant en haut du dispositif, dans l'échantillon, dans l'isolant en bas et dans la sonde, les contraintes à imposer aux modèles locaux s'expriment :

Couplage de l'isolant en haut avec l'air extérieur et avec l'échantillon	1) $-\frac{\partial T_{ih}(r,z,t)}{\partial z}\Big _{z=0} + h_{s,ih}^* T_{ih}(r,0,t) = h_{s,ih}^* T_{ec}(r,L,t) \quad 0 \leq z \leq L_{ih}$ 2) $\frac{\partial T_{ih}(r,z,t)}{\partial z}\Big _{z=L} + h_{n,ih}^* T_{ih}(r,L,t) = 0 \quad 0 \leq r \leq R$ 3) $-\frac{\partial T_{ih}(r,z,t)}{\partial z}\Big _{z=0} + h_{s,ih}^* T_{ih}(r,0,t) = h_{s,ih}^* T_{ec}(r,L,t) \quad 0 \leq r \leq R$
Couplage de l'échantillon avec l'air extérieur, la sonde chauffante et les isolants en haut et en bas du dispositif	4) $\frac{\partial T_{ec}(r,z,t)}{\partial r}\Big _{r=R} + h_{ec}^* T_{ec}(R,z,t) = 0 \quad 0 \leq z \leq L_{ec}$ 5) $\frac{\partial T_{ec}(r,z,t)}{\partial z}\Big _{z=L} + h_{n,ec}^* T_{ec}(r,L,t) = h_{n,ec}^* T_{ih}(r,0,t) \quad 0 \leq r \leq R$ 6) $-\frac{\partial T_{ec}(r,z,t)}{\partial z}\Big _{z=0} + h_{s,ec}^* T_{ec}(r,0,t) = h_{s,ec}^* T_{sd}(t) \quad 0 \leq r \leq R_o$ 7) $-\frac{\partial T_{ec}(r,z,t)}{\partial z}\Big _{z=0} + h_{s,ec}^* T_{ec}(r,0,t) = h_{s,ec}^* T_{ib}(r,L,t) \quad R_o < r \leq R$
Couplage de l'isolant en bas avec l'air extérieur, avec la sonde et avec l'échantillon	8) $\frac{\partial T_{ib}(r,z,t)}{\partial r}\Big _{r=R} + h_{ib}^* T_{ib}(R,z,t) = 0 \quad 0 \leq z \leq L_{ih}$ 9) $\frac{\partial T_{ib}(r,z,t)}{\partial z}\Big _{z=L} + h_{n,ib}^* T_{ib}(r,L,t) = h_{n,ib}^* T_{sd}(t) \quad 0 \leq r \leq R_o$ 10) $\frac{\partial T_{ib}(r,z,t)}{\partial z}\Big _{z=L} + h_{n,ib}^* T_{ib}(r,L,t) = h_{n,ib}^* T_{ec}(r,0,t) \quad R_o < r \leq R$ 11) $-\frac{\partial T_{ib}(r,z,t)}{\partial z}\Big _{z=0} + h_{s,ib}^* T_{ib}(r,0,t) = 0 \quad 0 \leq r \leq R$
Couplage de la sonde avec l'isolant en bas et avec l'échantillon	12) $f_{n,sd}(t) = \frac{2}{R_o^2} \int_{r=0}^{R_o} r T_{ec}(r,0,t) dr \quad 0 \leq r \leq R_o$ 13) $f_{s,sd}(t) = \frac{2}{R_o^2} \int_{r=0}^{R_o} r T_{ib}(r,L,t) dr \quad 0 \leq r \leq R_o$

Tableau 7.6 : Equations de couplage.

Dans le tableau ci-dessus, on a noté :

$$h_{ih}^* = \frac{h}{\lambda_{r,ih}} \quad h_{ec}^* = \frac{h}{\lambda_{r,ec}} \quad h_{ib}^* = \frac{h}{\lambda_{r,ib}} \quad h_{n,ih}^* = \frac{h_n}{\lambda_{z,ih}} \quad h_{s,ib}^* = \frac{h_s}{\lambda_{z,ib}}$$

$$h_{s,ih}^* = \frac{1}{R_{th,ih-ec} \lambda_{z,ih}} \quad h_{n,ec}^* = \frac{1}{R_{th,ih-ec} \lambda_{z,ec}} \quad h_{s,ec}^* = \frac{1}{R_{th,ib-ec} \lambda_{z,ec}} \quad h_{n,ib}^* = \frac{1}{R_{th,ib-ec} \lambda_{z,ib}}$$

$h_n$ ,  $h$  et  $h_s$  représentent les coefficients d'échanges convectifs du dispositif avec l'air extérieur via ses faces nord, latérale et sud respectivement.  $R_{th,ih-ec}$  et  $R_{th,ib-ec}$  sont les résistances thermiques de contact aux interfaces entre éléments. On considère que la résistance de contact sonde - échantillon (voire isolant en bas – sonde) est égale à  $R_{th,ib-ec}$ . Les conductivités thermiques dans les directions  $O\bar{z}$  et  $O\bar{r}$  sont désignées par  $\lambda_{z,k}$  et  $\lambda_{r,k}$  ( $k = ih, ec, ib$ ).

On notera que :

- a) les équations de couplage 1), 4) et 8) sont directement satisfaites par les modèles locaux tel qu'ils ont été définis (voir équation (7.16), définition de  $H$  ) ;
- b) l'équation de couplage 2) serait satisfaite par le modèle modal de l'isolant en haut si dans l'équation (7.15) on fait  $H_n = h_{n,ih}^*$  et  $f_n(r,t) = 0$  ;
- c) de même, en faisant  $H_s = h_{s,ib}^*$  et  $f_s(r,t) = 0$  dans les équations (7.15) de l'isolant en bas du dispositif, on satisfait l'équation 11) de couplage.

On réduit ainsi le nombre des inconnues aux fonctions  $f_s(r,t)$  et  $f_n(r,t)$  rattachées aux frontières internes : sud de l'isolant en haut, nord et sud de l'échantillon, nord de l'isolant en bas du dispositif et celles de la sonde. On appellera ces frontières, frontières de raccordement ou de couplage.

Il suffirait maintenant de reporter les équations (7.36) de raccordement dans les équations 3, 5-7, 9-10, 12-13 du tableau 7.6 pour avoir une expression des équations de couplage en fonction des éléments des bases modales, des états modaux et des inconnues  $f_s(r,t)$  et  $f_n(r,t)$ . L'écriture de ces équations est ennuyeuse et n'apporte pas de lumière particulière à ce stade, où la dimension du problème reste infinie. La démarche de couplage sera donc détaillée dans la section suivante, après troncature de la base modale et discrétisation des interfaces de couplage.

## 7.3. Le modèle modale du dispositif en pratique

Nous détaillons ici les aspects pratiques de la modélisation du dispositif expérimental en signalant les avantages de la démarche adoptée. Nous rappelons que le modèle de dispositif doit servir à terme à identifier les valeurs des paramètres thermiques de l'échantillon à partir de mesures. Ceci impose des contraintes de temps de calcul (de parcimonie en général) qui sont importantes, car le modèle sera au cœur des algorithmes non linéaires d'optimisation nécessaires à la recherche des paramètres thermiques. Ce qui suit est donc inspiré par ce besoin de parcimonie.

### 7.3.1. Etape n°1.- Calculs préliminaires

Le calcul des valeurs propres des bases modales locales est la tâche la plus exigeante en temps de calcul. Nous montrons ici que la partie coûteuse des calculs peut être effectuée une fois pour toutes et stockée quelque part.

Au lieu de résoudre les équations (7.21), qui dépendent des variables  $L$  et  $R$ , on résout les équations équivalentes :

$$\kappa_m J_o'(\kappa_m) + Bi J_o(\kappa_m) = 0 \quad \tan(\mu_p) = \frac{\mu_p (Bis + Bin)}{\mu_p^2 - Bis Bin} \quad (7.41)$$

où on a noté :

$$\kappa_m = \beta_m R \quad \mu_p = \eta_p L \quad Bi = RH \quad Bin = LH_n \quad Bis = LH_s$$

On voit bien que  $\kappa_m$  et  $\mu_p$  étant connus, on peut aisément calculer les valeurs propres d'un cylindre à dimensions  $L$  et  $R$  quelconques.

De même, on peut calculer une fois pour toutes les normes suivantes :

$$\frac{1}{N(\kappa_m)} = \frac{2}{J_o^2(\kappa_m)} \frac{\kappa_m^2}{\kappa_m^2 + Bi^2} \quad \frac{1}{N(\mu_p)} = 2 \left[ (\mu_p^2 + Bis^2) \left( 1 + \frac{Bin}{\mu_p^2 + Bin^2} \right) + Bin \right]^{-1} \quad (7.42)$$

On peut aisément montrer que :  $1/N(\beta_m) = R^2/N(\kappa_m)$  et  $1/N(\eta_p) = L/N(\mu_p)$ .

Les valeurs de  $\kappa_m$ ,  $\mu_p$ ,  $1/N(\kappa_m)$  et  $1/N(\mu_p)$  (en nombre suffisant) sont alors stockées quelque part pour son utilisation ultérieure.

Les calculs ci-dessus sont réalisés cylindre par cylindre, en adaptant à chaque fois les valeurs des nombres de Biot ( $Bi$ ,  $Bin$ ,  $Bis$ ). Cette étape de calcul ne sera à refaire que si l'on change fortement la nature des matériaux utilisés ou que l'on s'intéresse à des études concernant l'effet de la convection sur la réponse thermique du dispositif. Nous rappelons que les dispositifs expérimentaux doivent être conçus de façon à rendre leur réponse thermique insensible aux échanges convectifs. De ce fait, le choix des valeurs des paramètres  $Bi$ ,  $Bin$ ,  $Bis$  n'est pas critique et des variations raisonnables des conductivités thermiques des matériaux ne justifient pas de recalculer  $\kappa_m$ ,  $\mu_p$ ,  $1/N(\kappa_m)$  et  $1/N(\mu_p)$ .

### 7.3.2. Etape n°2.- Choix des éléments propres à garder et calcul des fonctions propres aux frontières de couplage

Il a été largement démontré qu'un nombre réduit des éléments de la base modale suffit en général pour reconstituer avec précision la réponse dynamique des systèmes thermiques (cf. [99, 100]).

Pour décider des éléments propres à retenir, nous allons calculer (cylindre par cylindre) les valeurs propres  $\gamma_{mp}^2 = \beta_m^2 + \varepsilon^2 \eta_p^2$  (avec  $\beta_m = \kappa_m / R$  et  $\eta_p = \mu_p / L$ ) et les indexer à nouveau pour les disposer en ordre croissant. A chaque nouvel index  $k$  correspond un couple  $mp$  ancien que l'on garde en mémoire :  $k \leftarrow mp$ . On ne retient ensuite que les  $n$  premières valeurs de  $\gamma_k^2$  ( $\gamma_1^2 \leq \gamma_2^2 \leq \dots \leq \gamma_n^2$ ), qui correspondent aux plus grandes constantes de temps du cylindre. Ce critère de choix est connu sous le nom de critère de troncature Marshall ([104]). Le choix de la valeur de  $n$  doit être effectué à bon escient et une méthode simple pour ce faire est proposée dans [100].

Pour l'ensemble des valeurs propres ci-dessus, on calcule les valeurs des fonctions propres sur les frontières de couplage. Ces informations seront nécessaires pour la suite. On discrétise alors les faces nord et sud du cylindre (qu'une des deux s'il s'agit d'un des isolants). Aussi bien en face nord qu'en face sud, on note :  $r_i$  ( $i=1 \dots n_r$ ) les coordonnées sur l'axe  $O\vec{r}$  des points issus de la discrétisation. Pour faciliter les couplages ultérieurs, on utilise les mêmes  $r_i$  pour tous les cylindres (maillages conformes). Après discrétisation, on calcule pour toutes les valeurs propres retenues :

a)  $\psi(\beta_{m(k)}, r_i) = J_o(\beta_{m(k)} r_i) / \sqrt{N(\beta_{m(k)})}$  pour tout  $r_i (i = 1 \dots n_r)$ .

b)  $\psi(\beta_{m(k)}, 0)$ ,  $\phi(\eta_{p(k)}, 0)$  et  $\phi'(\eta_{p(k)}, 0)$ . Nous rappelons que :

$$\phi(\eta_p, z) = [\eta_p \cos(\eta_p z) + H_s \sin(\eta_p z)] / \sqrt{N(\beta_m)} \text{ et } \phi'(\eta_p, z) \equiv d\phi(\eta_p, z) / dz$$

c)  $\Gamma_1(\beta_{m(k)}, 0)$ ,  $\Gamma_1(\beta_{m(k)}, L)$ ,  $\Gamma_2(\beta_{m(k)}, 0)$ ,  $\Gamma_2(\beta_{m(k)}, L)$ ,  $\Gamma'_1(\beta_{m(k)}, 0)$ ,  $\Gamma'_1(\beta_{m(k)}, L)$ ,  $\Gamma'_2(\beta_{m(k)}, 0)$  et  $\Gamma'_2(\beta_{m(k)}, L)$  (voir équations (7.30), (7.31) et (7.37)).

On construit également la matrice :

$$\mathbf{C} \equiv [c_{m,i}]_{m=1 \dots n; i=1 \dots n_r}$$

avec : 
$$c_{m,i} = \int_{r=r_i-\Delta r}^{r_i+\Delta r} r \psi(\beta_m, r) dr = R \frac{J_1(\beta_m, r_i + \Delta r) - J_1(\beta_m, r_i - \Delta r)}{\beta_m}$$

On notera, qu'après discrétisation des frontières de couplage, les équations (7.28) sont approchées par :

$$\vec{f}_{m,s}(t) = \sum_{i=1}^{n_r} c_{m,i} f_s(r_i, t) \quad \vec{f}_{m,n}(t) = \sum_{i=1}^{n_r} c_{m,i} f_n(r_i, t)$$

La matrice  $\mathbf{C}$  permettra alors d'écrire :  $\vec{f}_x(t) = \mathbf{C} \vec{f}_x(t)$  ( $x = s, n$ ), où  $\vec{f}_x(t)$  et  $\vec{f}_x(t)$  sont des vecteurs contenant les valeurs de  $\vec{f}_{m,x}(t)$  et  $f_x(r_i, t)$ .

On remarquera que tout changement sur  $\varepsilon^2$ ,  $L$  ou  $R$  oblige à repasser par cette étape.

### 7.3.3. Etape n°3.- Construction des modèles modaux locaux

Les **modèles modaux des cylindres** (isolants et échantillons) s'obtiennent de la façon suivante :

a) On construit l'équation d'état :

$$\frac{d\vec{X}(t)}{dt} = \mathbf{F}\vec{X}(t) + \mathbf{B}_s \frac{d\vec{f}_s(t)}{dt} + \mathbf{B}_n \frac{d\vec{f}_n(t)}{dt} \quad (7.43)$$

où  $\vec{X}(t)$  est le vecteur contenant les états modaux  $X_k(t)$ . A partir de l'équation (7.35), il est aisé de montrer que :

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{F} \equiv \text{diag} [-\alpha_r \gamma_k^2]_{k=1 \dots n} \\ \mathbf{B}_s \equiv \text{diag} [-\phi(\eta_{p(k)}, 0) / \gamma_k^2]_{k=1 \dots n} \mathbf{C} \\ \mathbf{B}_n \equiv \text{diag} [-\phi(\eta_{p(k)}, L) / \gamma_k^2]_{k=1 \dots n} \mathbf{C} \end{array} \right.$$

b) On écrit les équations des variables de raccordement :

$$\vec{T}_x(t) = \mathbf{H}_x \vec{X}(t) + \mathbf{D}_{x,s} \vec{f}_s(t) + \mathbf{D}_{x,n} \vec{f}_n(t) \quad (7.44)$$

$$\vec{T}'_x(t) = \mathbf{H}'_x \vec{X}(t) + \mathbf{D}'_{x,s} \vec{f}_s(t) + \mathbf{D}'_{x,n} \vec{f}_n(t)$$

avec  $x = r0, rL$  selon la face (sud ou nord) du cylindre sur la quelle on se place.  $\vec{T}_x$  est un vecteur de dimensions  $n_r$  contenant les températures aux points de discrétisation de la face

$x$ , tandis que  $\bar{T}'_x$  représente la dérivée spatiale associée. Le contenu des matrices dans l'équation (7.44) peut se déduire aisément à partir des équations (7.36). On a :

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{H}_{r0} \equiv [\psi(\beta_{m(k)}, r_i)\phi(\eta_{p(k)}, 0)]_{i=1 \dots n_r; k=1 \dots n} \\ \mathbf{D}_{r0,s} \equiv [\psi(\beta_{m(k)}, r_i)\Gamma_1(\beta_{m(k)}, 0)]_{i=1 \dots n_r; k=1 \dots n} \mathbf{C} \\ \mathbf{D}_{r0,n} \equiv [\psi(\beta_{m(k)}, r_i)\Gamma_2(\beta_{m(k)}, 0)]_{i=1 \dots n_r; k=1 \dots n} \mathbf{C} \end{array} \right. \left\{ \begin{array}{l} \mathbf{H}_{rL} \equiv [\psi(\beta_{m(k)}, r_i)\phi(\eta_{p(k)}, L)]_{i=1 \dots n_r; k=1 \dots n} \\ \mathbf{D}_{rL,s} \equiv [\psi(\beta_{m(k)}, r_i)\Gamma_1(\beta_{m(k)}, L)]_{i=1 \dots n_r; k=1 \dots n} \mathbf{C} \\ \mathbf{D}_{rL,n} \equiv [\psi(\beta_{m(k)}, r_i)\Gamma_2(\beta_{m(k)}, L)]_{i=1 \dots n_r; k=1 \dots n} \mathbf{C} \end{array} \right.$$

c) Enfin, l'équation de sortie est :

$$\bar{Y}(t) = \mathbf{H}\bar{X}(t) + \mathbf{D}_s \bar{f}_s(t) + \mathbf{D}_n \bar{f}_n(t) \quad (7.45)$$

où le vecteur  $\bar{Y}(t)$  regroupe les températures  $T(0,0,t)$  et  $T(0,L,t)$ . A partir des équations (7.38), on montre que :

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{H} \equiv [\psi(\beta_{m(k)}, 0)\phi(\eta_{p(k)}, a_i)]_{i=1,2; k=1 \dots n} \\ \mathbf{D}_s \equiv [\psi(\beta_{m(k)}, 0)\Gamma_1(\beta_{m(k)}, a_i)]_{i=1,2; k=1 \dots n} \mathbf{C} \\ \mathbf{D}_n \equiv [\psi(\beta_{m(k)}, 0)\Gamma_2(\beta_{m(k)}, a_i)]_{i=1,2; k=1 \dots n} \mathbf{C} \end{array} \right. \quad \text{avec } a_1 = 0, a_2 = L$$

Un modèle modal local est ainsi construit pour chaque cylindre (eq. (7.43) à (7.45)). On rappelle que pour les isolants on a supposé (voir section 7.2.3)  $\bar{f}_n(t) = 0$  (isolant en haut) et  $\bar{f}_s(t) = 0$  (isolant en bas).

On remarquera que les bases modales ne dépendent que des dimensions  $L$  et  $R$  des cylindres, ainsi que du degré d'orthotropie  $\varepsilon^2$  du matériau. Par conséquent, il ne sera pas nécessaire de recalculer les modèles ci-dessus tant que ces paramètres ne changent pas.

Enfin, le **modèle modal de la sonde** s'écrit (voir équations (7.39)) :

$$\frac{d\bar{X}_{sd}(t)}{dt} = \mathbf{F}_{sd}\bar{X}_{sd}(t) + \mathbf{B}_{s,sd} \frac{d\bar{f}_{s,sd}(t)}{dt} + \mathbf{B}_{n,sd} \frac{d\bar{f}_{n,sd}(t)}{dt} + \mathbf{B}_{sd} \frac{d\varphi(t)}{dt} \quad (7.46)$$

$$T_{sd}(t) = \mathbf{H}_{sd}\bar{X}_{sd}(t) + \mathbf{D}_{s,sd} \bar{f}_{s,sd}(t) + \mathbf{D}_{n,sd} \bar{f}_{n,sd}(t) + \mathbf{D}_{sd}\varphi(t) \quad (7.47)$$

avec

$$\mathbf{F}_{sd} = -\left(\frac{h_n + h_s}{mc}\right) \quad \mathbf{B}_{s,sd} = \frac{h_s}{(h_n + h_s)} \quad \mathbf{B}_{n,sd} = \frac{h_n}{(h_n + h_s)} \quad \mathbf{B}_{sd} = \frac{1}{(h_n + h_s)}$$

$$\mathbf{H}_{sd} = 1 \quad \mathbf{D}_{s,sd} = \frac{h_s}{(h_n + h_s)} \quad \mathbf{D}_{n,sd} = \frac{h_n}{(h_n + h_s)} \quad \mathbf{D}_{sd} = \frac{1}{(h_n + h_s)}$$

### 7.3.4. Etape n°4.- Génération des équations de couplage

Il s'agit ici de réécrire les équations de couplage 3, 5-7, 9-10 et 12-13 dans le tableau 7.6 sous forme modale. Pour ce faire, on reporte les expressions (7.44) dans la version discrétisée de ces équations. Comme dans la section 7.2.3, on utilise les indices *ih*, *ec*, *ib* et *sd* pour désigner les variables et les matrices se rapportant, respectivement, aux modèles locaux de l'isolant en haut du

dispositif, de l'échantillon, de l'isolant en bas et de la sonde. Les résultats obtenus sont donnés ci-dessous.

3)	$\left\{ \begin{aligned} &[-\mathbf{H}'_{r0} + h_s^* \mathbf{H}_{r0}]_{ih} \vec{X}_{ih} + [-\mathbf{D}'_{r0,s} + h_s^* \mathbf{D}_{r0,s}]_{ih} \vec{f}_{s,ih} + [-\mathbf{D}'_{r0,n} + h_s^* \mathbf{D}_{r0,n}]_{ih} \vec{f}_{n,ih} = \\ &= h_{s,ih}^* [\mathbf{H}_{rL} \vec{X} + \mathbf{D}_{rL,s} \vec{f}_s + \mathbf{D}_{rL,n} \vec{f}_n]_{ec} \end{aligned} \right.$	dim : $n_r$
5)	$\left\{ \begin{aligned} &[\mathbf{H}'_{rL} + h_n^* \mathbf{H}_{rL}]_{ec} \vec{X}_{ec} + [\mathbf{D}'_{rL,s} + h_n^* \mathbf{D}_{rL,s}]_{ec} \vec{f}_{s,ec} + [\mathbf{D}'_{rL,n} + h_n^* \mathbf{D}_{rL,n}]_{ec} \vec{f}_{n,ec} = \\ &= h_{n,ec}^* [\mathbf{H}_{r0} \vec{X} + \mathbf{D}_{r0,s} \vec{f}_s + \mathbf{D}_{r0,n} \vec{f}_n]_{ih} \end{aligned} \right.$	dim : $n_r$
6)	$\left\{ \begin{aligned} &[-\mathbf{H}'_{r0} + h_s^* \mathbf{H}_{r0}]_{ec}^{\#} \vec{X}_{ec} + [-\mathbf{D}'_{r0,s} + h_s^* \mathbf{D}_{r0,s}]_{ec}^{\#} \vec{f}_{s,ec} + [-\mathbf{D}'_{r0,n} + h_s^* \mathbf{D}_{r0,n}]_{ec}^{\#} \vec{f}_{n,ec} = \\ &= h_{s,ec}^* [\mathbf{H} \vec{X} + \mathbf{D}_s \vec{f}_s + \mathbf{D}_n \vec{f}_n + \mathbf{D} \varphi]_{sd} \end{aligned} \right.$	dim : $n_s$
7)	$\left\{ \begin{aligned} &[-\mathbf{H}'_{r0} + h_s^* \mathbf{H}_{r0}]_{ec}^{\bullet} \vec{X}_{ec} + [-\mathbf{D}'_{r0,s} + h_s^* \mathbf{D}_{r0,s}]_{ec}^{\bullet} \vec{f}_{s,ec} + [-\mathbf{D}'_{r0,n} + h_s^* \mathbf{D}_{r0,n}]_{ec}^{\bullet} \vec{f}_{n,ec} = \\ &= h_{s,ec}^* [\mathbf{H}_{rL}^{\bullet} \vec{X} + \mathbf{D}_{rL,s}^{\bullet} \vec{f}_s + \mathbf{D}_{rL,n}^{\bullet} \vec{f}_n]_{ib} \end{aligned} \right.$	dim : $n_r - n_s$
9)	$\left\{ \begin{aligned} &[\mathbf{H}'_{rL} + h_n^* \mathbf{H}_{rL}]_{ib}^{\#} \vec{X}_{ib} + [\mathbf{D}'_{rL,s} + h_n^* \mathbf{D}_{rL,s}]_{ib}^{\#} \vec{f}_{s,ib} + [\mathbf{D}'_{rL,n} + h_n^* \mathbf{D}_{rL,n}]_{ib}^{\#} \vec{f}_{n,ib} = \\ &= h_{n,ib}^* [\mathbf{H} \vec{X} + \mathbf{D}_s \vec{f}_s + \mathbf{D}_n \vec{f}_n + \mathbf{D} \varphi]_{sd} \end{aligned} \right.$	dim : $n_s$
10)	$\left\{ \begin{aligned} &[\mathbf{H}'_{rL} + h_n^* \mathbf{H}_{rL}]_{ib}^{\bullet} \vec{X}_{ib} + [\mathbf{D}'_{rL,s} + h_n^* \mathbf{D}_{rL,s}]_{ib}^{\bullet} \vec{f}_{s,ib} + [\mathbf{D}'_{rL,n} + h_n^* \mathbf{D}_{rL,n}]_{ib}^{\bullet} \vec{f}_{n,ib} = \\ &= h_{n,ib}^* [\mathbf{H}_{r0}^{\bullet} \vec{X} + \mathbf{D}_{r0,s}^{\bullet} \vec{f}_s + \mathbf{D}_{r0,n}^{\bullet} \vec{f}_n]_{ec} \end{aligned} \right.$	dim : $n_r - n_s$
12)	$\vec{f}_{n,sd} = \mathbf{A} [\mathbf{H}_{r0} \vec{X} + \mathbf{D}_{r0,s} \vec{f}_s + \mathbf{D}_{r0,n} \vec{f}_n]_{ec}$	dim : 1
13)	$\vec{f}_{s,sd} = \mathbf{A} [\mathbf{H}_{rL} \vec{X} + \mathbf{D}_{rL,s} \vec{f}_s + \mathbf{D}_{rL,n} \vec{f}_n]_{ib}$	dim : 1

Tableau 7.7 : Equations modales de couplage. On a noté  $n_s$  le nombre de points (après discrétisation) des faces sud de l'échantillon et nord de l'isolant en bas qui sont en contact avec la surface de la sonde. Par  $M^{\#}$  on indique les  $n_s$  premières lignes de la matrice  $M$  et avec  $M^{\bullet}$  on désigne les  $(n_r - n_s)$  lignes restantes. Le nombre d'équations algébriques dans chacune des équations matricielles est désigné par *dim* et est renseigné à droite.

La matrice  $\mathbf{A}$  dans le tableau 7.7 résulte de la discrétisation des équations (7.40). Elle est donnée par :  $\mathbf{A} = [(4\Delta r r_i) / R_o^2]_{i=1 \dots n_r}$ .

On remarquera que le nombre d'équations algébriques de couplage ci-dessus est égal au nombre d'inconnues des modèles modaux locaux :  $n_r$  variables de couplage en face sud de l'isolant en haut,  $2n_r$  sur les faces nord et sud de l'échantillon,  $n_r$  en face nord de l'isolant en bas et 2 en surface de la sonde.

### 7.3.5. Etape n°5.- Obtention du modèle global du dispositif

La méthode d'obtention du modèle global que nous allons décrire a été proposée dans [105] et élargie et généralisée ensuite dans [106]. Elle comporte trois étapes principales : a) la juxtaposition

des équations des modèles locaux ; b) la résolution des équations de couplage ; et c) la synthèse du modèle global.

La **juxtaposition** consiste à rassembler les équations d'état des modèles locaux, les équations de couplage et celles de sortie dans une même équation matricielle d'état, de couplage et de sortie respectivement. Ainsi, pour l'équation d'état juxtaposée on écrit\*\*\* :

$$\frac{d\vec{X}^*(t)}{dt} = \mathbf{F}^* \vec{X}^*(t) + \mathbf{B}_s^* \frac{d\vec{f}_s^*(t)}{dt} + \mathbf{B}_n^* \frac{d\vec{f}_n^*(t)}{dt} + \mathbf{B}^* \frac{d\varphi(t)}{dt} \quad (7.48)$$

où

$$\vec{X}^*(t) = \begin{bmatrix} \vec{X}_{ih}(t) \\ \vec{X}_{ec}(t) \\ \vec{X}_{ib}(t) \\ \vec{X}_{sd}(t) \end{bmatrix} \quad \vec{f}_s^*(t) = \begin{bmatrix} \vec{f}_{s,ih}(t) \\ \vec{f}_{s,ec}(t) \\ \vec{f}_{s,sd}(t) \end{bmatrix} \quad \vec{f}_n^*(t) = \begin{bmatrix} \vec{f}_{n,ec}(t) \\ \vec{f}_{n,ib}(t) \\ \vec{f}_{n,sd}(t) \end{bmatrix} \quad (7.49)$$

Les matrices  $\mathbf{F}^*$ ,  $\mathbf{B}_s^*$ ,  $\mathbf{B}_n^*$  et  $\mathbf{B}^*$  résultent d'un arrangement convenable, en cohérence avec le contenu des vecteur ci-dessus (Eq. (7.49)), des matrices des équations d'état des modèles locaux.

Par exemple, la matrice d'état  $\mathbf{F}^*$  est donnée par :

$$\mathbf{F}^* = \begin{bmatrix} \mathbf{F}_{ih} & \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{F}_{ec} & \mathbf{0} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{F}_{ib} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{F}_{sd} \end{bmatrix}$$

Par convenance, on réécrit l'équation (7.48) sous la forme plus compacte :

$$\frac{d\vec{X}^*(t)}{dt} = \mathbf{F}^* \vec{X}^*(t) + \mathbf{B}_c^* \frac{d\vec{f}_c^*(t)}{dt} + \mathbf{B}^* \frac{d\varphi(t)}{dt} \quad (7.50)$$

avec :

$$\mathbf{B}_c^* = \begin{bmatrix} \mathbf{B}_s^* \\ \mathbf{B}_n^* \end{bmatrix} \quad \vec{f}_c^*(t) = \begin{bmatrix} \vec{f}_s^*(t) \\ \vec{f}_n^*(t) \end{bmatrix}$$

Toutes les inconnues apparaissent alors regroupées dans un même vecteur de variables de couplage.

De même, l'équation de sortie juxtaposée résulte d'un arrangement des équations (7.45) et de l'équation (7.47) dans une seule équation matricielle. On l'écrit :

$$\vec{Y}^*(t) = \mathbf{H}^* \vec{X}^*(t) + \mathbf{D}_c^* \vec{f}_c^*(t) + \mathbf{D}^* \varphi(t) \quad (7.51)$$

où le vecteur  $\vec{Y}^*(t)$  contient dans l'ordre : les températures en face nord et en face sud de l'isolant en haut, les températures en face nord et en face sud de l'échantillon, les températures en face nord et en face sud de l'isolant bas et la température de la sonde. Souvent on simplifie l'équation (7.51) en éliminant les sorties correspondant aux isolants.

---

\*\*\* On se souviendra que pour les isolants on a supposé (voir section 7.2.3)  $\vec{f}_n(t) = 0$  (isolant en haut) et  $\vec{f}_s(t) = 0$  (isolant en bas).

Enfin, à partir des équations dans le tableau 7.7, on obtient l'équation de couplage juxtaposée. On l'écrit :

$$\mathbf{M}^* \vec{X}^*(t) + \mathbf{N}_c^* \vec{f}_c^*(t) + \mathbf{N}^* \varphi(t) = 0 \quad (7.52)$$

Les matrices  $\mathbf{M}^*$ ,  $\mathbf{N}_c^*$  et  $\mathbf{N}^*$  résultent de l'arrangement des équations du tableau 7.7 en cohérence avec le contenu des vecteurs  $\vec{X}^*(t)$  et  $\vec{f}_c^*(t)$  (voir eq. (7.49)). Les dimensions de ces matrices sont respectivement  $(4n_r + 2) \times n$ ,  $(4n_r + 2) \times (4n_r + 2)$  et  $(4n_r + 2) \times 1$ , où  $n$  représente le nombre d'état modaux.

La résolution des équations de couplage conduit à écrire :

$$\vec{f}_c^*(t) = -(\mathbf{N}_c^*)^{-1} [\mathbf{M}^* \vec{X}^*(t) + \mathbf{N}^* \varphi(t)] \quad (7.53)$$

L'inversibilité de la matrice  $\mathbf{N}_c^*$  a été étudiée et prouvée dans [105] et [107].

Enfin, l'étape de synthèse aboutit au modèle global recherché. Il est obtenu en reportant l'expression (7.53) dans les équations d'état (7.50) et de sortie (7.51) juxtaposées. On écrit :

$$\begin{aligned} \frac{d\vec{X}(t)}{dt} &= \mathbf{F} \vec{X}(t) + \mathbf{B} \frac{d\varphi(t)}{dt} \\ \vec{Y}(t) &= \mathbf{H} \vec{X}(t) + \mathbf{D} \varphi(t) \end{aligned} \quad (7.54)$$

avec :

$$\begin{aligned} \mathbf{F} &\leftarrow [\mathbf{I} + \mathbf{B}_c^*(\mathbf{N}_c^*)^{-1} \mathbf{M}^*]^{-1} \mathbf{F}^* \\ \mathbf{B} &\leftarrow [\mathbf{I} + \mathbf{B}_c^*(\mathbf{N}_c^*)^{-1} \mathbf{M}^*]^{-1} [\mathbf{B}^* - \mathbf{B}_c^*(\mathbf{N}_c^*)^{-1} \mathbf{N}^*] \\ \mathbf{H} &\leftarrow \mathbf{H}^* - \mathbf{D}_c^*(\mathbf{N}_c^*)^{-1} \mathbf{M}^* \\ \mathbf{D} &\leftarrow \mathbf{D}^* - \mathbf{D}_c^*(\mathbf{N}_c^*)^{-1} \mathbf{N}^* \end{aligned} \quad \text{et} \quad \begin{aligned} \vec{X}(t) &\leftarrow \vec{X}^*(t) \\ \vec{Y}(t) &\leftarrow \vec{Y}^*(t) \end{aligned}$$

Les propriétés de la matrice  $[\mathbf{I} + \mathbf{B}_c^*(\mathbf{N}_c^*)^{-1} \mathbf{M}^*]$  ont été étudiées dans [105] et son inversibilité a été prouvée. Nous rappelons que pour des sollicitations (densité de flux  $\varphi$ ) de type échelon et un état initial nul, la solution de l'équation (7.54) est :

$$\vec{Y}(t) = [\mathbf{D} + \mathbf{H} e^{\mathbf{F}t} \mathbf{B}] \varphi(t) \quad (7.55)$$

### 7.3.6. Récapitulatif des avantages de la démarche de modélisation adoptée

Les avantages majeurs de la démarche de modélisation adoptée sont en rapport avec la parcimonie et la réduction des temps de calcul. Elles découlent de :

- la représentation modale du problème, qui permet en général de réduire fortement la dimension (degrés de liberté) des systèmes d'équations différentielles ordinaires (équations d'état) à intégrer. Nous n'avons pas exploré exhaustivement le potentiel de la méthode à cet égard. Cependant, les figures 7.2 et 7.3 laissent entrevoir sa puissance. On y a représenté la réponse thermique d'un dispositif de type disque chaud calculée avec deux modèles modaux de dimensions (nombre d'éléments propres) 1005 et 100 respectivement. La figure 7.2

contient les évolutions thermiques simulées sur quatre points d'observation : au centre des faces nord et sud de l'échantillon, sur la face sud de l'échantillon à  $r = 0.6R$  et sur la sonde. Dans la figure 7.3 sont représentés les écarts entre les simulations réalisées avec le modèle à 1005 éléments propres et les simulations issues du modèle à 100 éléments. Les dimensions et les propriétés thermiques du dispositif considéré, ainsi que la puissance de chauffage appliquée, sont décrites dans la section 7.5.1, Tableau 7.8 (échantillon n°2a).

- la simplicité de la géométrie du dispositif, qui permet de calculer analytiquement les éléments de la base modale. Seule la discrétisation spatiale des frontières de couplage est requise.
- la structuration de la démarche, qui permet de réduire au maximum les calculs à réaliser lors des analyses de sensibilité paramétrique ou de l'identification de paramètres. Ainsi, pour un problème donné où les dimensions ( $R$ ,  $R_o$  et épaisseur des couches) du dispositif ont été fixées :
  - L'étape n°1 (section 7.3.1), la plus coûteuse en temps de calcul, ne se fait qu'une fois. Même quand les dimensions du dispositif changent on peut garder les valeurs de  $\kappa_m$ ,  $\mu_p$ ,  $1/N(\kappa_m)$  et  $1/N(\mu_p)$  calculées. Seules des variations très importantes des nombres de Biot  $Bi$ ,  $Bin$  ou  $Bis$  justifieraient de repasser par cette étape.
  - L'étape n°2 (section 7.3.2) doit se répéter en partie quand on change la valeur de  $\varepsilon^2 = \lambda_z / \lambda_r$ . D'abord, on notera que ces changements ne concernent que le modèle de l'échantillon (les isolants sont, en général, isotropes). Ensuite, on rappelle que les fonctions propres ( $\psi$  et  $\phi$ ) sont indépendantes de  $\varepsilon^2$ . Seules les fonctions  $\Gamma_1(z=0, L)$  et  $\Gamma_2(z=0, L)$  doivent alors être recalculées.
  - L'étape n°3 (section 7.3.3) de construction des modèles locaux doit se refaire quand on change les paramètres thermiques des matériaux. Ceci est très rarement le cas pour les modèles des isolants. Seul le modèle de l'échantillon et celui de la sonde sont concernés.
  - L'étape n°4 (section 7.3.4) de génération des équations de couplage est à refaire à chaque fois que l'on repasse par une des étapes ci-dessus. Elle serait également à refaire quand on modifie les résistances de contact entre les éléments du dispositif.
  - Enfin, l'étape n°5 est toujours un passage obligé. Cependant, elle n'exige que la manipulation de matrices de dimensions assez réduites.

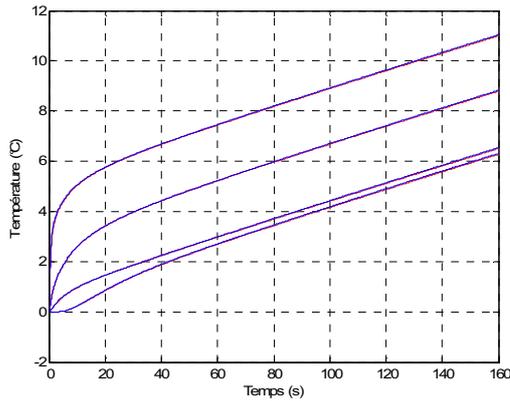


Figure 7.2 : Réponse thermique d'un dispositif de type disque chaud calculée avec un modèle à 1005 éléments propres (en rouge) et avec un modèle à 100 éléments propres (en bleu).

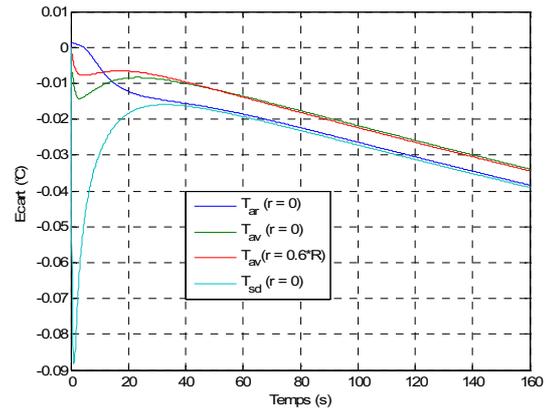


Figure 7.3 : Ecart entre les réponses thermiques calculées avec le modèle à 1005 éléments propres et le modèle à 100 éléments propres : ar (face nord), av (face sud), sd (sonde).

## 7.4. Analyse du dispositif de type plan chaud

Cette section est dédiée à l'étude du dispositif de type plan chaud dans une optique de caractérisation thermique de matériaux. Le modèle de dispositif décrit préalablement est ici utilisé pour émuler des expériences et réaliser des analyses de sensibilité « ad hoc ».

Les seuls points d'observation retenus sont : a) la température en face arrière de l'échantillon,  $T_{ar}$  ; b) la température en face avant de l'échantillon,  $T_{av}$  ; et c) la température à l'interface entre la sonde et l'isolant en bas du dispositif, que nous désignerons température de la sonde  $T_{sd}$  par la suite. Les paramètres thermiques caractérisant les transferts dans le dispositif sont :

- Les propriétés thermiques de l'échantillon :  $\rho c_p$  (capacité thermique),  $\lambda_z$  (conductivité thermique dans la direction  $O\bar{z}$ ) et  $\lambda_r$  (conductivité thermique dans la direction  $O\bar{r}$ ).
- Les propriétés thermiques (conductivité et capacité thermiques) des isolants.
- Trois coefficients d'échanges convectifs : le coefficient d'échanges entre l'air et la face nord du dispositif ( $h_n$ ), le coefficient d'échanges latéraux ( $h$ ) et celui d'échanges entre l'air et la face sud du dispositif ( $h_s$ ).
- La capacité thermique de la sonde ( $mc$ ) et la résistance thermique de contact entre la sonde et l'échantillon ( $R_c$ ).
- Les résistances thermiques de contact entre la sonde et l'isolant en bas et entre l'échantillon et l'isolant en haut (notées  $R_{th}$  par la suite).

### 7.4.1. Les échantillons étudiés et les propriétés thermiques des éléments fixes du dispositif

Les échantillons que nous allons étudier sont décrits dans le tableau 7.8. Il s'agit des mêmes échantillons qui ont été utilisés dans la section 6.3.4 pour étudier les dispositifs de type plan chaud

idéalisés. Nous rappelons que les dimensions des échantillons, ainsi que la puissance de la sonde chauffante, ont été déterminés pour que la température en face arrière des échantillons soit de  $7^{\circ}\text{C}$  ( $T_L^* = 7^{\circ}\text{C}$ ) en fin de expérience ( $t_f = 200\text{s}$ ), avec une différence de températures entre les faces avant et arrière de  $3^{\circ}\text{C}$  ( $\Delta T^* = 3^{\circ}\text{C}$ ). Les valeurs des rayons ont été fixées de façon à rendre l'évolution thermique des échantillons insensible aux échanges convectifs latéraux.

Echantillon	$\lambda_z$ ( $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ )	$\lambda_r$ ( $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ )	$\rho c_p$ ( $\text{J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ )	$L$ (m)	$R$ (m)	$P$ (W)
n°1	1.2	1.2	$1.27 \cdot 10^6$	0.0120	0.0238	1.08
n°2a	2.0	18.5	$1.57 \cdot 10^6$	0.0138	0.0841	19.25
n°2b	18.5	2.0	$1.57 \cdot 10^6$	0.0420	0.0276	6.31
n°3a	4.5	32.0	$1.55 \cdot 10^6$	0.0208	0.1113	50.18
n°3a	32.0	4.5	$1.55 \cdot 10^6$	0.0556	0.0413	18.47

Tableau 7.8 : Description des échantillons étudiés.

Les isolants en haut et en bas du dispositif sont supposés identiques, avec  $3\text{ cm}$  d'épaisseur et des valeurs de conductivité et de capacité thermiques de  $0.03\text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $4.08 \times 10^4\text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  respectivement. Les valeurs adoptées pour les coefficients d'échanges convectifs entre l'air et le dispositif sont :  $h = 0$  et  $h_n = h_s = 4\text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ . On a supposé que la sonde chauffante est une sonde commerciale en Kapton avec  $mc = 640\text{ J.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ . Les résistances thermiques de contact  $R_{ih}$ , qui n'ont pas d'influence significative sur la réponse thermique du dispositif aux points d'observation, ont été fixées à  $R_{ih} \approx 10^{-14}\text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$ .

Quant à la valeur de  $R_c$  (résistance de contact sonde – échantillon), deux scénarii distincts seront considérés : a)  $R_c$  faible ; b)  $R_c$  forte. Comme montré dans la figure 7.4, la limite entre  $R_c$  faible (domaine 1 dans la figure) ou forte (domaine 2) est fonction de la conductivité thermique  $\lambda_z$  de l'échantillon. Le domaine de faibles résistances de contact (domaine 1) a été défini comme celui des valeurs de  $R_c$  telles que  $(\lambda_{eq} - \lambda_z) / \lambda_z < 0.05$ , où  $\lambda_{eq}$  est la conductivité thermique équivalente du système sonde – échantillon. Elle est donnée par :

$$\frac{L_t}{\lambda_{eq}} = R_c + \frac{L}{\lambda_z} \quad \text{avec} \quad L_t = L + \text{épaisseur sonde} \approx L$$

Pour établir la figure 7.4 on a utilisé les valeurs de  $\lambda_z$  et  $L$  dans le tableau 8.

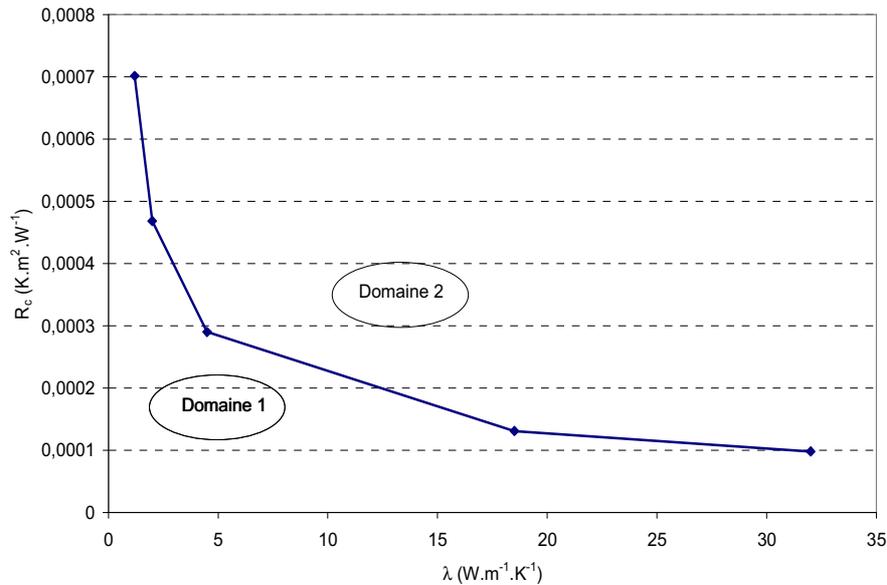


Figure 7.4 : Définition des domaines de faibles (1) et fortes (2) résistances de contact entre l'échantillon et la sonde.

### 7.4.2. Trait caractéristiques de la réponse thermique du dispositif

Vu que les conditions expérimentales ont été fixées de manière à ce que tous les échantillons suivent une même évolution thermique aux temps longs, nous ne montrerons par la suite que les résultats relatifs à l'échantillon 2a ( $\lambda_z = 18.5 W.m^{-1}.K^{-1}$ ).

La figure 7.5 montre alors l'évolution thermique du dispositif ( $T_{ar}$ ,  $T_{av}$  et  $T_{sd}$ ) obtenue pour cet échantillon. Elle a été calculée avec une résistance thermique de contact forte entre l'échantillon et la sonde ( $R_c = 6.25 \times 10^{-4} K.m^2.W^{-1}$ ). Dans la figure 6, nous avons représenté les dérivées par rapport au temps des températures  $T_{ar}$ ,  $T_{av}$  et  $T_{sd}$ . De l'examen de ces deux figures on peut conclure que :

- La méthode proposée dans la section 6.3.4 pour guider le choix des conditions expérimentales est transposable au cas des dispositifs réels. En effet, on retrouve bien une température en face arrière de l'échantillon de l'ordre de 7°C en fin d'expérience et une différence de température entre les faces avant et arrière de 3°C environ comme souhaité.
- L'allure des thermogrammes est semblable à celle des dispositifs idéalisés. Notamment, on constate qu'aux temps longs le dispositif évolue à la même vitesse sur tous les points d'observation. Par ailleurs, la figure 7.6 montre que cette vitesse d'échauffement est constante.

Les mêmes types de constats ont été réalisés sur l'ensemble des échantillons testés. Tout porte à penser que l'évolution du dispositif réel puisse s'approcher de celle d'un dispositif idéalisé équivalent. Le tableau 7.9 vient appuyer cette thèse. On y trouve les valeurs des paramètres thermiques  $\rho c_p$  et

$\lambda_z$  de l'échantillon n°2a estimées en utilisant une de s équations (6.30) du chapitre 6 sur les données fournies par l'expérience simulée. Il s'agit de l'équation établissant l'évolution thermique en face arrière de l'échantillon (temps longs) dans un dispositif idéal :

$$T_{ar} \equiv T_{t \rightarrow \infty}(L, t) = -\frac{1}{6} \frac{\varphi L}{\lambda_z} + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t$$

où  $\varphi$  représente la densité de flux d'énergie dégagée par la sonde. On remarque que la pente de cette droite détermine la capacité thermique de l'échantillon, tandis que la constante permet d'accéder à la valeur de la conductivité thermique. Les résultats obtenus en dispositif réel (tableau 7.9) montrent que l'on arrive à retrouver les propriétés thermiques de l'échantillon avec un biais inférieur à 3%. Ces écarts sont notamment dus à l'erreur sur la valeur de  $\varphi$  renseignée pour déterminer  $\lambda_z$  et  $\rho c_p$ . Nous rappelons qu'en dispositif réel (isolation imparfaite) la densité de flux dégagée par la sonde et celle qui traverse l'échantillon diffèrent. En s'affranchissant de la connaissance de  $\varphi$ , on arrive à déterminer la diffusivité thermique de l'échantillon (pente de la droite / constante de la droite) avec un écart inférieur à 1,5%. Dans les travaux de Bastian (cf. [108]) il est signalé que l'approximation ci-dessus serait valable tant que le rapport « effusivité de isolant / effusivité de l'échantillon » reste inférieur à 0.02.

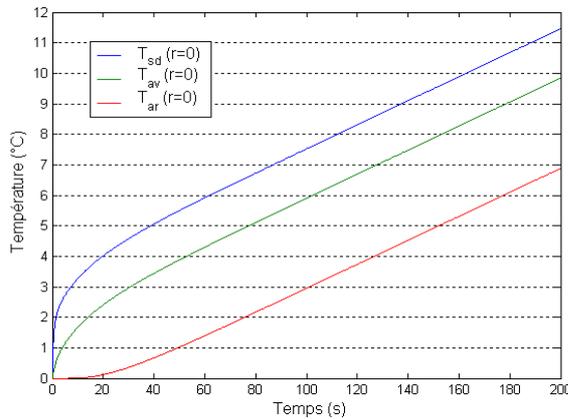


Figure 7.5 : Evolution en temps des températures aux points d'observation.

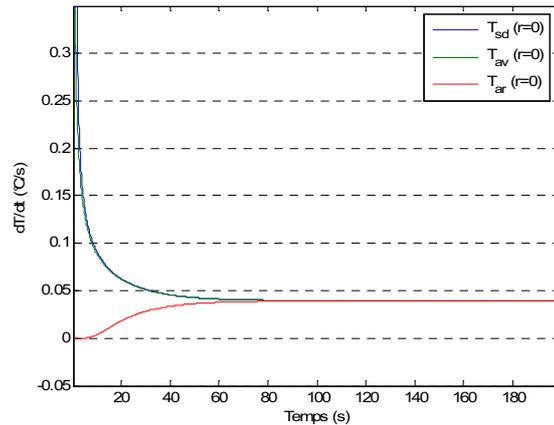


Figure 7.6 : Vitesse d'échauffement (dérivées des températures par rapport au temps) des points d'observation.

$R_c (K.m^2.W^{-1})$	$\rho c_p \times 10^6 (J.m^{-3}.K^1)$	Écarts (%)	$\lambda_z (W.m^{-1}.K^1)$	Écarts (%)	$\alpha_z \times 10^{-5} (m^2.s^{-1})$	Écarts (%)
$6.25 \times 10^{-5}$	1.595	1.6	19.09	3.1	1.196	1.5
$6.25 \times 10^{-4}$	1.599	1.8	18.74	1.3	1.171	0.6

Tableau 7.9 : Valeurs estimées des paramètres  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$  de l'échantillon n°2a.

### 7.4.3. Analyse de sensibilité paramétrique

Comme pour les dispositifs idéaux, nous avons réalisé des analyses de sensibilité paramétrique sur l'ensemble des expériences (donc des échantillons) simulées. Nous illustrons les résultats obtenus à partir des résultats correspondant à l'échantillon n<sup>o</sup>2a ( $\lambda_z = 18.5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ). Les figures 7.7 et 7.8 montrent de haut en bas:

- Les sensibilités réduites des températures  $T_{ar}$  (face arrière de l'échantillon),  $T_{av}$  (face avant de l'échantillon) et  $T_{sd}$  (sonde) aux paramètres ayant une influence perceptible sur la réponse thermique du dispositif ( $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $mc$  et  $R_c$ ).
- Les sensibilités réduites des dérivées  $dT_{ar}/dt$ ,  $dT_{av}/dt$  et  $dT_{sd}/dt$  aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $mc$  et  $R_c$ .
- Les sensibilités réduites des différences de températures  $T_{av} - T_{ar}$  et  $T_{sd} - T_{ar}$  par rapport aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $mc$  et  $R_c$ .

La figure 7.7 correspond à des expériences simulées avec une forte résistance thermique de contact entre l'échantillon et la sonde ( $R_c = 6.25 \times 10^{-5} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$ ), tandis que la figure 7.8 est issue des expériences simulées avec une faible résistance de contact ( $R_c = 6.25 \times 10^{-4} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$ ). L'examen de ces figures montre que :

- Aux temps courts, les paramètres  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$  sont fortement corrélés. Ce constat est fait indépendamment du point d'observation et de la variable étudiée (température, dérivée par rapport au temps ou différence de température). Seules l'effusivité et/ou la diffusivité thermiques de l'échantillon seraient identifiables sur ces plages de temps.
- Par contre aux temps longs, la décorrélation entre ces deux paramètres est significative. Par ailleurs, comme pour les dispositifs idéalisés, les dérivées par rapport au temps des températures aux points d'observation ne sont sensibles qu'à  $\rho c_p$ , tandis que les différences de températures  $T_{av} - T_{ar}$  et  $T_{sd} - T_{ar}$  ne réagissent qu'aux perturbations sur  $\lambda_z$  (aussi à  $R_c$  pour  $T_{sd} - T_{ar}$ ).
- L'observation sur l'interface « sonde – isolant en bas » est moins intéressante que les observations en face avant et/ou face arrière de l'échantillon, car la corrélation entre  $\lambda_z$  et  $R_c$  est parfaite aux temps longs.

Les faces arrière ou avant de l'échantillon apparaissent alors comme étant des lieux préférables pour l'observation. L'estimation des paramètres thermiques  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$  semble envisageable aussi bien à partir des mesures de  $T_{ar}$  (face arrière de l'échantillon), qu'à partir des mesures de  $T_{av}$  (face avant de l'échantillon).

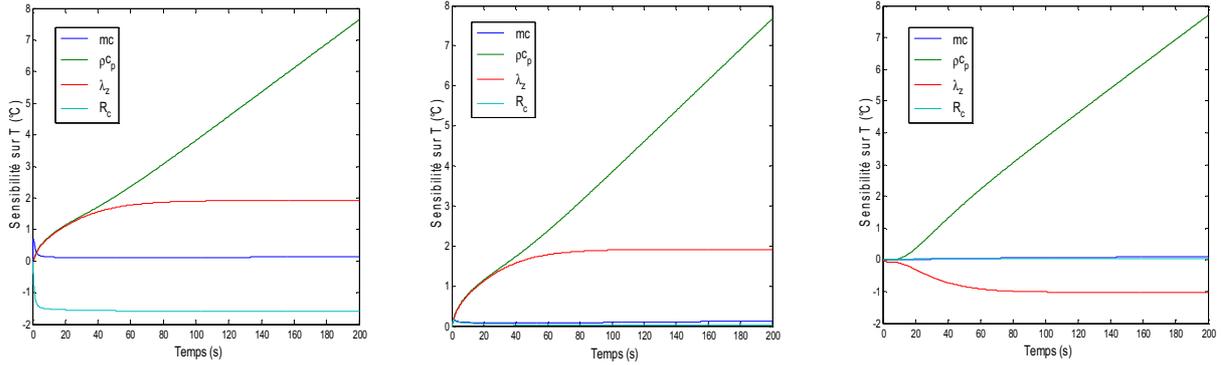


Figure 7.7a : Courbes de sensibilité réduite des températures  $T_{sd}$  (à gauche),  $T_{av}$  (centre) et  $T_{ar}$  (droite) aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $mc$  et  $R_c$ .

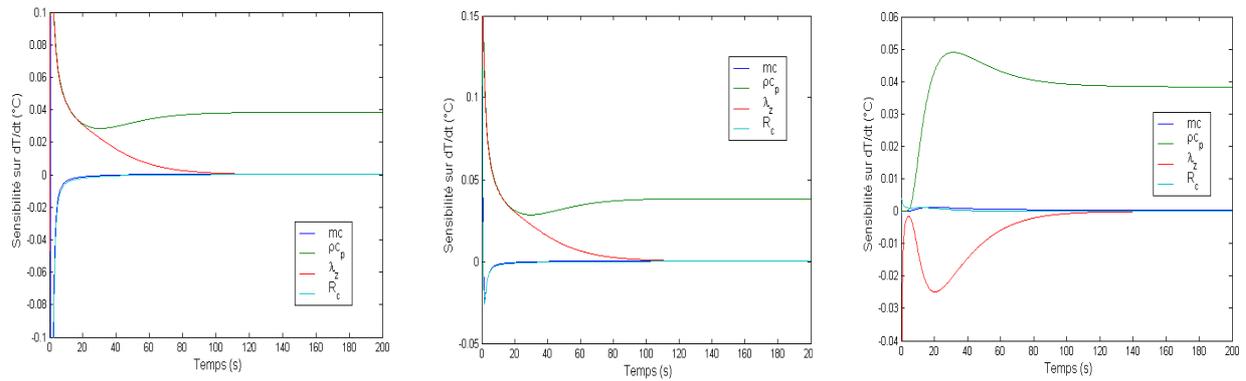


Figure 7.7b : Courbes de sensibilité réduite des dérivées  $dT_{sd}/dt$  (à gauche),  $dT_{av}/dt$  (centre) et  $dT_{ar}/dt$  (droite) aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $mc$  et  $R_c$ .

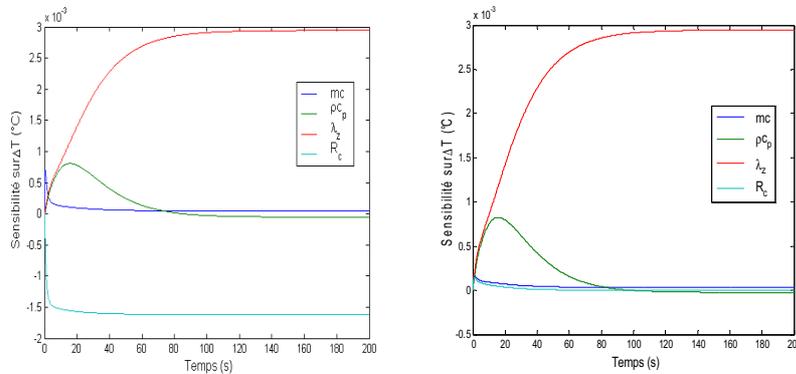


Figure 7.7c : Courbes de sensibilité réduite des différences de température  $T_{sd} - T_{ar}$  (à gauche) et  $T_{av} - T_{ar}$  (droite) aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $mc$  et  $R_c$ .

Echantillon n°2a avec  
 $R_c = 6.25 \times 10^{-4} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$

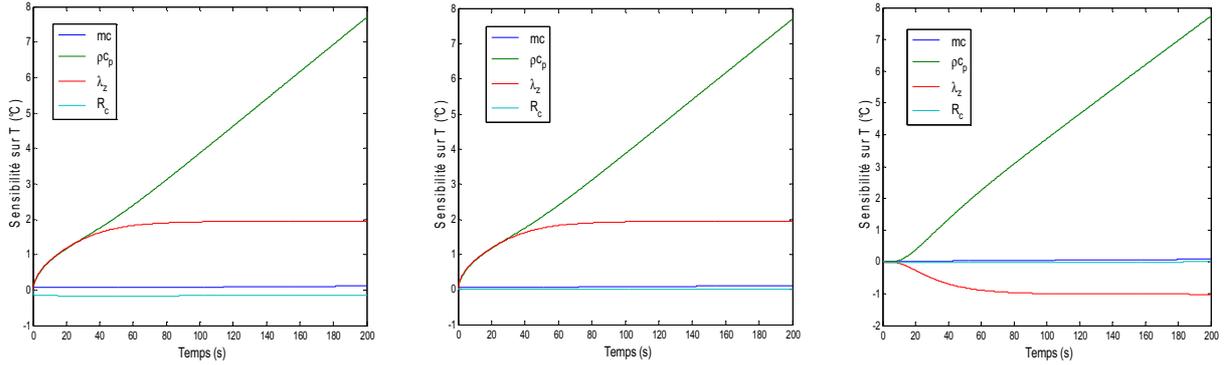


Figure 7.8a : Courbes de sensibilité réduite des températures  $T_{sd}$  (à gauche),  $T_{av}$  (centre) et  $T_{ar}$  (droite) aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $mc$  et  $R_c$ .

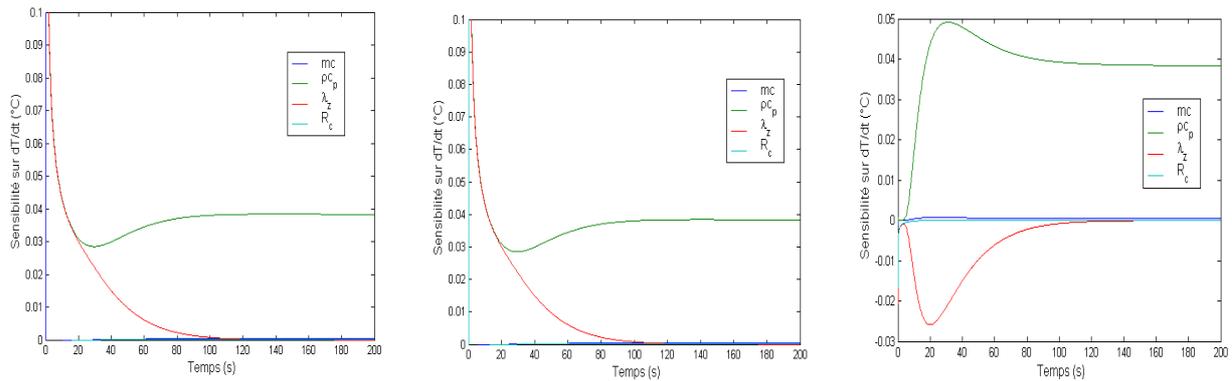


Figure 7.8b : Courbes de sensibilité réduite des dérivées  $dT_{sd}/dt$  (à gauche),  $dT_{av}/dt$  (centre) et  $dT_{ar}/dt$  (droite) aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $mc$  et  $R_c$ .

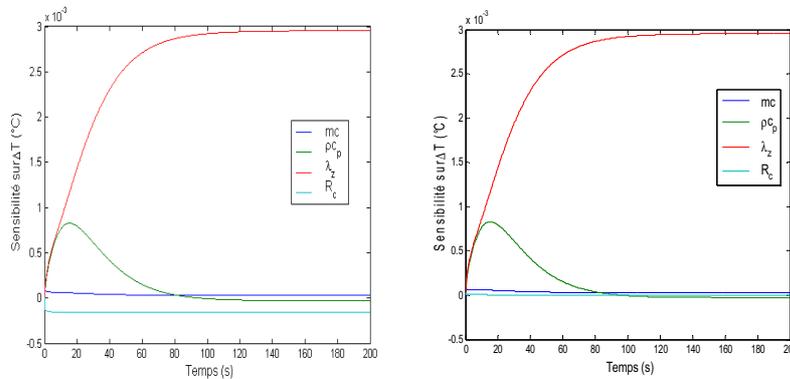


Figure 7.8c : Courbes de sensibilité réduite des différences de température  $T_{sd} - T_{ar}$  (à gauche) et  $T_{av} - T_{ar}$  (droite) aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $mc$  et  $R_c$ .

Echantillon n°2a avec  
 $R_c = 6.25 \times 10^{-5} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$

## 7.5. Analyse du dispositif de type disque chaud

L'objectif de cette section est d'étudier la possibilité d'estimer  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$  et  $\rho c_p$  en dispositif réel de type disque chaud. Le modèle de dispositif décrit dans la section 7.3 est ici utilisé pour émuler des expériences et réaliser des analyses de sensibilité paramétriques. Comme pour le dispositif de type plan chaud, les points d'observation retenus sont : a) la température en face arrière centre ( $r = 0$ ) de l'échantillon,  $T_{ar}$  ; b) la température en face avant centre de l'échantillon,  $T_{av}$  ; et c) la température en

face arrière centre de la sonde  $T_{sd}$  (température de la sonde par la suite). Les paramètres thermiques caractérisant les transferts dans le dispositif sont les mêmes que ceux listés en introduction de la section précédente.

### 7.5.1. Les échantillons étudiés et les propriétés thermiques des éléments fixes du dispositif

Les échantillons que nous allons étudier sont décrits dans le tableau 7.10. Il s'agit des mêmes échantillons que ceux utilisés dans la section 6.4.4 pour étudier les dispositifs de type disque chaud idéalisés. Nous rappelons que les dimensions des échantillons, ainsi que la puissance de la sonde chauffante, ont été déterminées pour que la température en face arrière des échantillons soit de  $7^{\circ}\text{C}$  ( $T_L^* = 7^{\circ}\text{C}$ ) en fin de expérience ( $t_f = 160\text{s}$ ), avec une différence de température entre les faces avant et arrière de  $3^{\circ}\text{C}$  ( $\Delta T^* = 3^{\circ}\text{C}$ ). Le rapport entre le rayon de la sonde et celui de l'échantillon est dans tous les cas  $R_o / R = 0.6$ .

Echantillon / Configuration		$\rho c_p \times 10^6$ ( $J.m^{-3}.K^1$ )	$\lambda_z$ ( $W.m^{-1}.K^1$ )	$\lambda_r$ ( $W.m^{-1}.K^1$ )	$L$ (m)	$R$ (m)	$P$ (W)
n°1		1.27	1.2	1.2	0.0073	0.0146	0.25
n°2	a	1.57	2	18.5	0.0085	0.05	4.46
	b		18.5	2	0.0258	0.0169	1.47
n°3	a	1.55	4.5	32	0.0128	0.0683	11.66
	b		32	4,5	0.0341	0.0256	4.37

Tableau 7.10 : Description des échantillons étudiés.

Comme dans la section précédente, les isolants en haut et en bas du dispositif sont supposés identiques, avec  $2\text{cm}$  d'épaisseur et des valeurs de conductivité et de capacité thermiques de  $0.03\text{W}.m^{-1}.K^{-1}$  et  $4.08 \times 10^4\text{J}.m^{-3}.K^{-1}$  respectivement. Les valeurs adoptées pour les coefficients d'échanges convectifs entre l'air et le dispositif sont :  $h = 5\text{W}.m^{-2}.K^{-1}$  et  $h_n = h_s = 4\text{W}.m^{-2}.K^{-1}$ . On a supposé également que la capacité thermique de la sonde est  $mc = 640\text{J}.m^{-2}.K^{-1}$ . Les résistances thermiques de contact  $R_{th}$ , qui n'ont pas d'influence significative sur la réponse thermique du dispositif, ont été fixées à  $R_{th} = 6.25 \times 10^{-5}\text{K}.m^2.W^{-1}$ . Quant à la valeur de  $R_c$  (résistance de contact sonde – échantillon), les deux mêmes scénarii ( $R_c$  faible ;  $R_c$  forte) que pour le plan chaud ont été retenus (voir figure 7.4).

## 7.5.2. Traits caractéristiques de la réponse thermique du dispositif

La méthode adoptée pour décider des conditions expérimentales est telle que tous les échantillons suivront des évolutions thermiques semblables (au moins aux temps longs). Comme auparavant, il suffira donc de montrer les résultats obtenus pour un de ces échantillons.

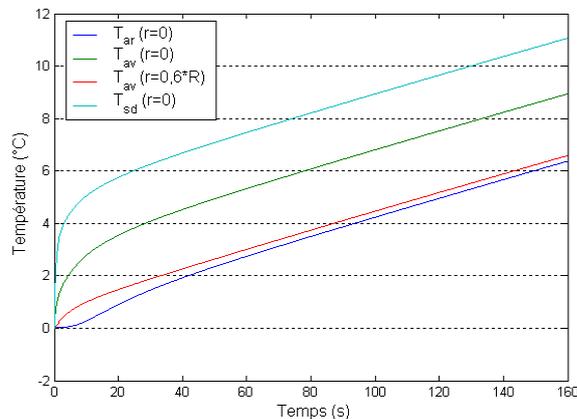


Figure 7.9 : Evolution en temps des températures aux points d'observation.

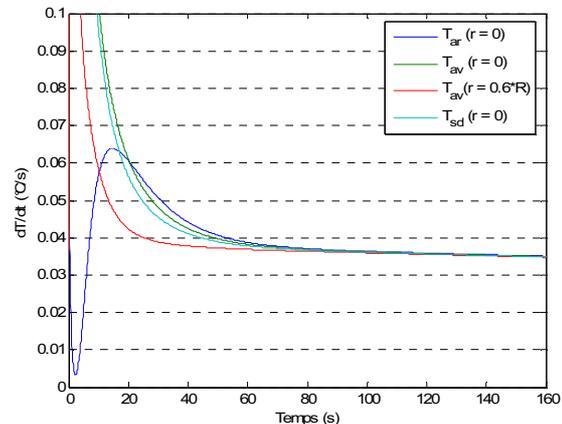


Figure 7.10 : Vitesse d'échauffement (dérivées des températures par rapport au temps) des points d'observation.

La figure 7.9 montre l'évolution thermique du dispositif ( $T_{ar}$ ,  $T_{av}(r=0)$ ,  $T_{av}(r=0.6R)$  et  $T_{sd}$ ) calculée pour l'échantillon n°2a avec une résistance thermique de contact forte entre l'échantillon et la sonde ( $R_c = 6.25 \times 10^{-4} K.m^2.W^{-1}$ ). Dans la figure 7.10, nous avons représenté les dérivées par rapport au temps des températures observées. De l'examen de ces deux figures on peut conclure que :

- La méthode proposée dans la section 6.4.4 pour guider le choix des conditions expérimentales est transposable au cas des dispositifs réels. Comme souhaité, on retrouve bien en fin d'expérience une température en face arrière de l'échantillon de l'ordre de 7°C et une différence de température entre les faces avant et arrière de 3°C environ.
- L'allure des thermogrammes est semblable à celle des dispositifs idéalisés. On constate qu'aux temps longs le dispositif évolue à la même vitesse sur tous les points d'observation. Cependant, la figure 7.10 montre que cette fois-ci la vitesse d'échauffement n'est plus constante.

Les mêmes types de constats ont été établis sur l'ensemble des échantillons testés. On remarquera que l'évolution du dispositif disque chaud réel serait plus difficilement approchable par celle d'un dispositif idéalisé équivalent que dans le cas du plan chaud.

## 7.5.3. Analyse de sensibilité paramétrique

Comme pour les dispositifs idéaux, nous avons réalisé des analyses de sensibilité paramétrique sur l'ensemble des expériences (donc échantillons) simulées. Nous retenons l'échantillon n°2a pour illustrer les résultats. Les figures 7.11 et 7.12 montrent de haut en bas:

- Les sensibilités réduites des températures  $T_{ar}$  (face arrière centre de l'échantillon),  $T_{av}$  (face avant centre de l'échantillon) et  $T_{sd}$  (sonde) aux paramètres ayant une influence perceptible sur la réponse thermique du dispositif ( $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$ ,  $mc$  et  $R_c$ ), ainsi qu'au coefficient d'échanges convectifs latéraux ( $h$ ).
- Les sensibilités réduites des dérivées  $dT_{ar}/dt$ ,  $dT_{av}/dt$  et  $dT_{sd}/dt$  aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$ ,  $mc$ ,  $R_c$  et  $h$ .
- Les sensibilités réduites des différences de température  $T_{av} - T_{ar}$  et  $T_{sd} - T_{ar}$  aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$ ,  $mc$ ,  $R_c$  et  $h$ .

La figure 7.11 correspond à des expériences simulées avec une forte résistance thermique de contact entre l'échantillon et la sonde ( $R_c = 6.25 \times 10^{-4} K.m^2.W^{-1}$ ), tandis que la figure 7.12 est issue des expériences simulées avec  $R_c = 6.25 \times 10^{-5} K.m^2.W^{-1}$ . Elles montrent que :

- Aux temps courts, les paramètres  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$  sont fortement corrélés entre eux. Ceci étant vrai indépendamment du point d'observation et de la variable étudiée (température, dérivée par rapport au temps ou différence de température). Par ailleurs, ces deux paramètres montrent des corrélations significatives avec ( $mc$ ) et  $R_c$  quand on observe en face avant de l'échantillon ou sur la sonde. Par contre, quel que soit le point d'observation,  $\lambda_r$  semble décorrélée du reste des paramètres.
- Aux temps longs, c'est  $\rho c_p$  le seul paramètre décorrélé du reste, tandis qu'une corrélation parfaite apparaît entre  $\lambda_z$  et  $\lambda_r$  (aussi avec  $R_c$  pour les observations en face avant de l'échantillon et sur la sonde). Comme pour les dispositifs idéalisés, les dérivées par rapport au temps des températures ne sont sensibles qu'à  $\rho c_p$ , tandis que les différences de température  $T_{av} - T_{ar}$  et  $T_{sd} - T_{ar}$  ne réagissent qu'aux perturbations sur  $\lambda_z$  et  $R_c$ .
- Le seul point d'observation insensible à la résistance de contact  $R_c$  est le point en face arrière centre de l'échantillon.

L'estimation des paramètres thermiques  $\rho c_p$ ,  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$  semble donc envisageable à partir des seules mesures de  $T_{ar}$  (face arrière de l'échantillon). L'analyse des données aux temps longs permettrait d'identifier  $\rho c_p$ , tandis que les observations aux temps courts donneraient accès aux valeurs de  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$ .

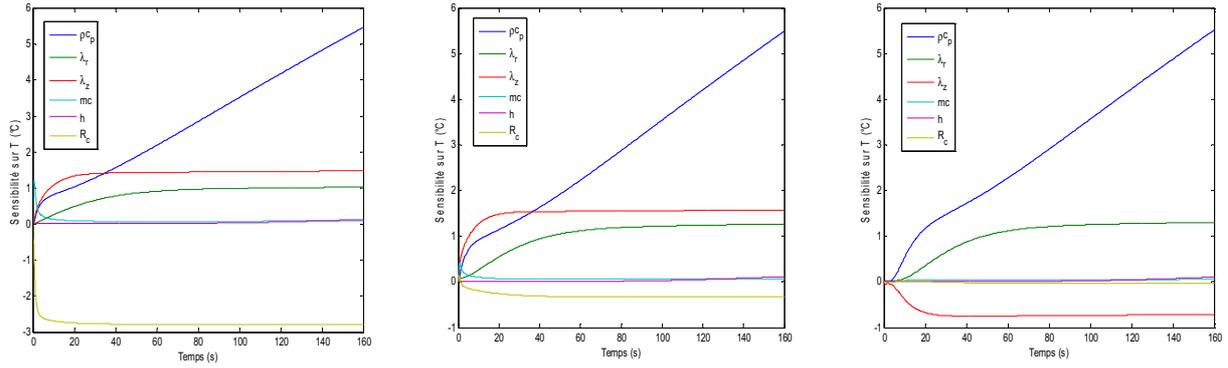


Figure 7.11a : Courbes de sensibilité réduite des températures  $T_{sd}$  (à gauche),  $T_{av}$  (centre) et  $T_{ar}$  (droite) aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$ ,  $mc$ ,  $R_c$  et  $h$ .

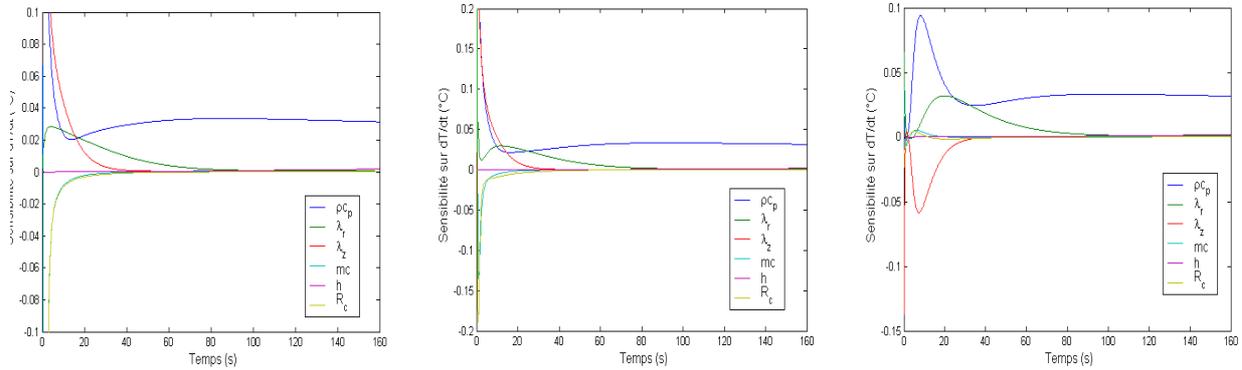


Figure 7.11b : Courbes de sensibilité réduite des dérivées  $dT_{sd}/dt$  (à gauche),  $dT_{av}/dt$  (centre) et  $dT_{ar}/dt$  (droite) aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$ ,  $mc$ ,  $R_c$  et  $h$ .

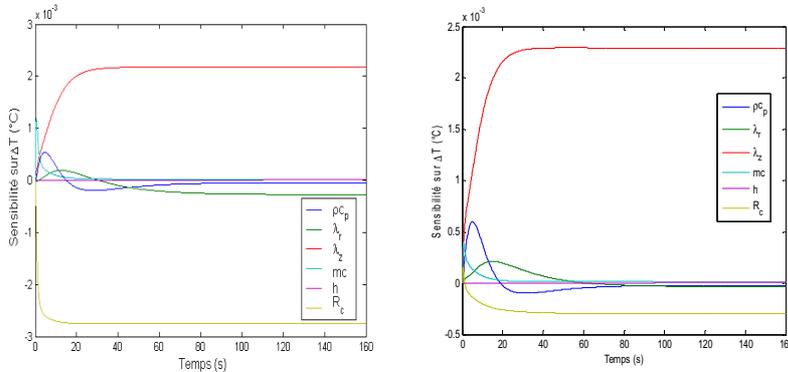


Figure 7.11c : Courbes de sensibilité réduite des différences de température  $T_{sd} - T_{ar}$  (à gauche) et  $T_{av} - T_{ar}$  (droite) aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$ ,  $mc$ ,  $R_c$  et  $h$ .

Echantillon n°2 avec  
 $\lambda_z = 18.5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$   
 et  $R_c = 6.25 \times 10^{-4} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$

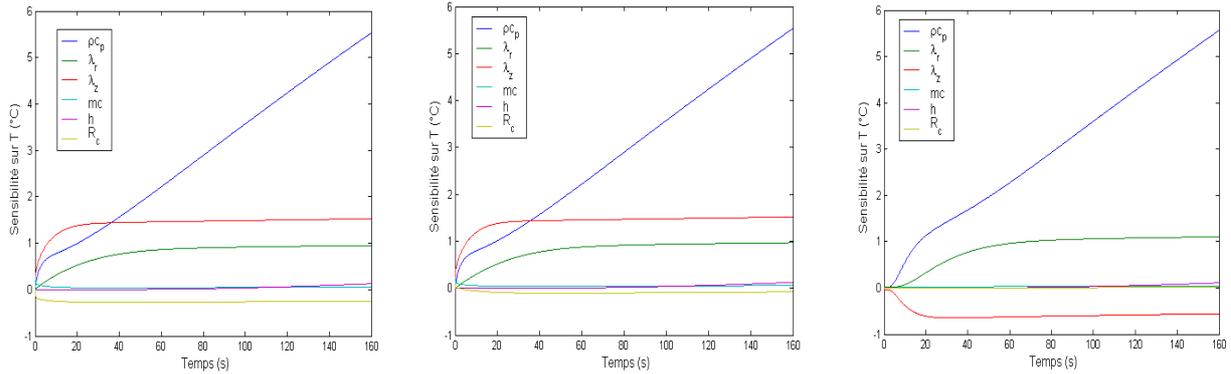


Figure 7.12a : Courbes de sensibilité réduite des températures  $T_{sd}$  (à gauche),  $T_{av}$  (centre) et  $T_{ar}$  (droite) aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$ ,  $mc$ ,  $R_c$  et  $h$ .

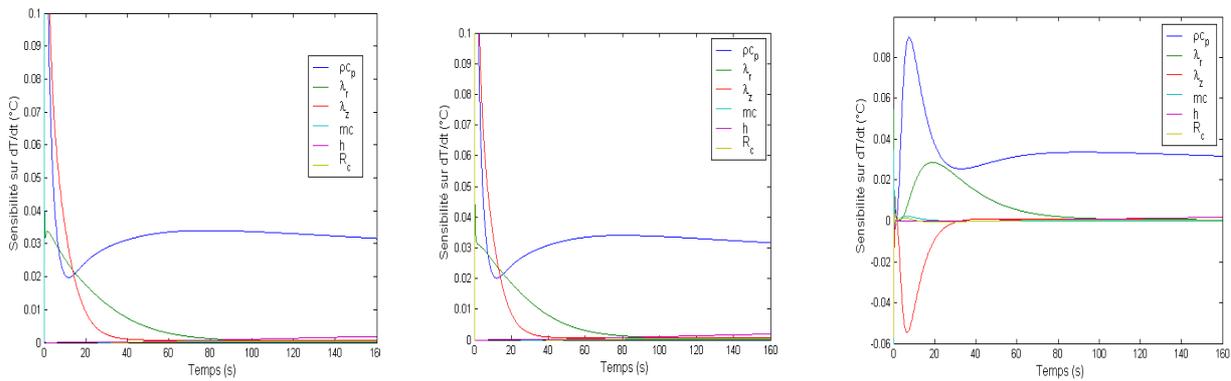


Figure 7.12b : Courbes de sensibilité réduite des dérivées  $dT_{sd}/dt$  (à gauche),  $dT_{av}/dt$  (centre) et  $dT_{ar}/dt$  (droite) aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$ ,  $mc$ ,  $R_c$  et  $h$ .

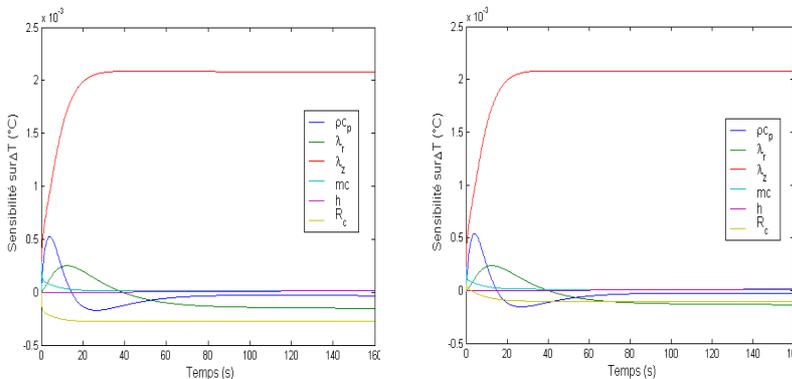


Figure 7.12c : Courbes de sensibilité réduite des différences de température  $T_{sd} - T_{ar}$  (à gauche) et  $T_{av} - T_{ar}$  (droite) aux paramètres  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$ ,  $mc$ ,  $R_c$  et  $h$ .

Echantillon n°2 avec  
 $\lambda_z = 18.5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$   
 et  $R_c = 6.25 \times 10^{-5} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$

## 7.6. Conclusion

Nous avons proposé une démarche de modélisation des dispositifs réels de type plan chaud et disque chaud qui s'adapte particulièrement bien à l'usage ultérieur que l'on fera de ces modèles (analyse de sensibilité et identification de paramètres). Son intérêt réside dans les possibilités de réduction de temps de calcul qu'elle offre. Elles sont apportées par :

- Le choix de la représentation modale du problème, qui permet de réduire fortement la dimension (degrés de liberté) des systèmes d'équations différentielles ordinaires à intégrer.

- La simplicité de la géométrie du dispositif, qui permet de calculer analytiquement les éléments de la base modale. Seule la discrétisation spatiale des frontières de couplage est requise.
- La structuration de la démarche de modélisation, qui réduit au maximum les calculs à réaliser lors des analyses de sensibilité paramétrique ou de l'identification de paramètres.

L'exploitation de ces modèles dans le but d'analyser le comportement de dispositifs réels a mis en évidence que :

- Les méthodes proposées dans le chapitre 6 (dispositifs idéalisés) pour guider le choix des conditions expérimentales sont transposables aux cas des dispositifs réels.
- Pour les dispositifs de type plan chaud, la possibilité d'estimer les paramètres thermiques  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$  à partir des mesures de température en face arrière (ou avant) de l'échantillon, en n'exploitant que les informations aux temps longs, se confirme.
- Pour les dispositifs de type disque chaud, l'estimation des paramètres thermiques  $\rho c_p$ ,  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$  semble envisageable à partir des mesures de la température en face arrière de l'échantillon. Il semble également, qu'en utilisant des mesures en face avant et arrière on puisse se limiter à exploiter les observations aux temps longs.

## **Chapitre 8: Stratégies d'estimation des propriétés thermiques et applications**

*Nous arrivons enfin au cœur de nos préoccupations : l'estimation des propriétés thermiques de matériaux à l'aide de dispositifs de type plan chaud ou disque chaud.*

*Dans la première section, nous présentons les stratégies d'estimation qui ont été proposées à l'issue des observations du comportement thermique des dispositifs réels et des résultats des analyses de sensibilité correspondant. Elle comporte également la description de la procédure de validation qui sera appliquée par la suite.*

*La deuxième section montre la pertinence des stratégies d'estimation définies pour les dispositifs de type plan chaud, tandis que la troisième est dédiée aux dispositifs de type disque chaud. Des tests de robustesse des estimations aux bruits de mesure, ainsi que des évaluations des biais introduits par la méconnaissance des paramètres de la sonde, ont été réalisés dans les deux cas.*

*La dernière section illustre le bien fondé de nos développements. Elle contient quelques exemples d'application des méthodes d'estimation proposées à la caractérisation thermique des matériaux « standards » et des matériaux composites graphite/sel.*

## 8.1. Description des stratégies d'estimation et de la procédure de validation

Nous décrivons ici les stratégies d'estimation que nous proposons. La première partie est dédiée aux dispositifs de type plan chaud, tandis que la deuxième s'occupe des dispositifs de type disque chaud. La dernière partie présente la procédure de validation des stratégies qui sera adoptée par la suite.

En suivant la nomenclature des chapitres précédents, on note  $\rho c_p$ ,  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$  la capacité thermique de l'échantillon et ses conductivités thermiques dans les directions  $O\bar{r}$  et  $O\bar{z}$ . De la même manière,  $T_{ar}$ ,  $T_{av}$  et  $T_{sd}$  désignent, respectivement les températures en face arrière de l'échantillon, en face avant de l'échantillon et en face arrière de la sonde. Les paramètres caractérisant la sonde chauffante sont notés :  $R_c$  (résistance thermique de contact entre la sonde et l'échantillon) et  $(mc)$  (capacité thermique).

### 8.1.1. Description des stratégies d'estimation pour les dispositifs de type plan chaud

Pour définir ces stratégies nous nous sommes fortement inspirés des résultats des analyses de comportement thermique et de sensibilité paramétrique réalisées dans les chapitres précédents. Nous résumons ici les remarques principales :

- a) L'allure de la réponse thermique d'un dispositif de type plan chaud réel est tout à fait semblable à celle des dispositifs idéalisés équivalents. Notamment, on constate qu'aux temps longs la vitesse d'échauffement du dispositif est constante et indépendante du point d'observation.
- b) L'observation en face arrière de l'échantillon est celle qui permet de s'affranchir au mieux de l'influence des paramètres de la sonde sur les mesures. A l'opposé, la mesure en face arrière de la sonde est fortement sensible aux perturbations des paramètres  $R_c$  et  $(mc)$ .
- c) Aux temps longs, les dérivées par rapport au temps des températures  $T_{ar}$  et  $T_{av}$  ne sont sensibles qu'à  $\rho c_p$ , tandis que leur différence  $T_{av} - T_{ar}$  ne réagit qu'aux perturbations sur  $\lambda_z$ . Ces deux paramètres sont décorrélés en tout point d'observation aux temps longs.

De ces remarques découlent : 1) un choix de points d'observation ; 2) une méthode simple pour initialiser la valeur des paramètres recherchés :  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$  ; et 3) deux stratégies distinctes d'estimation en fonction du nombre de points d'observation disponibles.

### **Choix des points d'observation**

Compte tenu de la remarque b), nous écartons la possibilité d'effectuer des estimations à partir de l'observation de  $T_{sd}$ . On supposera que la mesure de température en face arrière  $T_{ar}$  est toujours disponible. Par contre, la mesure de la température en face avant  $T_{av}$  de l'échantillon<sup>10</sup>, bien plus délicate à relever, peut faire défaut.

Nous rappelons que la mesure de  $T_{ar}$  se fait à l'interface entre deux milieux (échantillon – isolant) dont les effusivités thermiques sont très différentes. L'effusivité de l'échantillon étant bien plus importante que celle de l'isolant, il imposera la température à l'interface. Il n'est donc pas irraisonnable de supposer qu'un thermocouple placé à cet endroit mesure la température  $T_{ar}$  recherchée. Par contre, en face avant le rapport d'effusivités entre l'échantillon et la sonde n'est pas (en général) suffisant pour accepter une telle hypothèse.

### **Initialisation des valeurs des paramètres**

De l'observation a) découle une méthode simple d'initialisation des valeurs de  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$ . Elle consiste à se placer aux temps longs et à effectuer une simple régression linéaire sur les observations en face arrière (voire en face avant). L'expression :

$$T_{ar} \equiv T_{t \rightarrow \infty}(L, t) = -\frac{1}{6} \frac{\varphi L}{\lambda_z} + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t \quad \varphi = \text{densité de flux d'énergie dégagée par la sonde}$$

correspondant à l'évolution du dispositif idéalisé aux temps longs, montre que la pente de la droite de régression permet une première estimation de  $\rho c_p$  ; tandis que la constante donne accès à une première estimation de  $\lambda_z$ . On notera  $\rho c_{p\ ini}$  et  $\lambda_{z\ ini}$  les valeurs de la capacité et de la conductivité thermiques ainsi déterminées. Pour s'affranchir de la méconnaissance de  $\varphi$  en dispositif réel, il est également souhaitable de garder la valeur  $\alpha_{z\ ini} = \lambda_{z\ ini} / \rho c_{p\ ini}$  de diffusivité thermique, dont le biais sera moindre.

La plage des temps longs est facilement décelable à partir de l'examen visuel des observations. Elle commence quand l'évolution de la température aux points d'observation devient linéaire.

### **Stratégies d'estimation**

En fonction des observations disponibles, deux stratégies distinctes d'estimation sont ensuite envisageables. Elles découlent des remarques a) et c) et n'exploitent que les observations aux temps longs. Aussi, elles se déroulent en deux étapes : la première permet l'estimation de  $\rho c_p$ , tandis que la deuxième fournit l'estimation de  $\lambda_z$ .

---

<sup>10</sup> On notera que dans la littérature on désigne souvent « température face avant », la température en face arrière de la sonde. Avec le terme « face avant » nous faisons toujours référence à la température relevée par un capteur collé en face arrière de l'échantillon.

**Stratégie 1T** : Elle est définie en supposant qu'on ne dispose que des observations en face arrière de l'échantillon<sup>11</sup>. On procédera comme suit :

- 1) On estime d'abord  $\rho c_p$  en cherchant le zéro de la fonction :

$$f = \beta_{\text{exp}} - \beta_{\text{mod}}$$

$\beta_{\text{exp}}$  est la pente de la réponse thermique aux temps longs mesurée en face arrière de l'échantillon, tandis que  $\beta_{\text{mod}}$  est la pente de la réponse thermique simulée à l'aide du modèle de transferts. L'algorithme utilisé est un algorithme standard de recherche par intervalles des points de changement de signe de la fonction  $f$ . On initialise la recherche à  $\rho c_{p \text{ ini}}$  et on note  $\tilde{\rho c_p}$  le résultat de celle-ci.

- 2) On actualise ensuite la valeur initiale de la conductivité thermique :  $\lambda_{z \text{ ini}} = \alpha_{z \text{ ini}} \tilde{\rho c_p}$ . Nous rappelons que le biais sur  $\alpha_{z \text{ ini}}$  est toujours inférieur au biais de la valeur de  $\lambda_{z \text{ ini}}$  issue de la première étape d'initialisation.

- 3) On passe enfin à l'estimation de  $\lambda_z$ . Pour ce faire, on cherche le zéro de la fonction :

$$f = c_{\text{exp}} - c_{\text{mod}}$$

$c_{\text{exp}}$  est la constante de la droite de régression calculée à partir des mesures de la température en face arrière de l'échantillon ; tandis que  $c_{\text{mod}}$  est la constante obtenue à partir de la réponse thermique simulée à l'aide du modèle de transferts. On initialise la recherche à  $\lambda_{z \text{ ini}}$  et on note  $\tilde{\lambda}_z$  le résultat de celle-ci.

**Stratégie 2T** : Cette deuxième stratégie est définie en supposant qu'on dispose des mesures en face avant et arrière de l'échantillon. Elle ne diffère de la stratégie précédente que dans l'étape 3). On a remarqué dans les études de sensibilité du chapitre précédent, que la différence de températures  $T_{av} - T_{ar}$  aux temps longs n'est sensible qu'aux variations de  $\lambda_z$ . Par conséquent, l'estimation de  $\lambda_z$  se fait maintenant en cherchant le zéro de la fonction :

$$f = \Delta T_{\text{exp}} - \Delta T_{\text{mod}}$$

où  $\Delta T_{\text{exp}}$  est la valeur moyenne des différences  $T_{av} - T_{ar}$  mesurées aux temps longs ; tandis que  $\Delta T_{\text{mod}}$  représente la différence  $T_{av} - T_{ar}$  calculée à partir du modèle de transferts. Comme auparavant, on initialise la recherche à  $\lambda_{z \text{ ini}}$  et on note  $\tilde{\lambda}_z$  le résultat de celle-ci.

---

<sup>11</sup> On pourrait également l'appliquer aux observations en face avant. Cependant, comme déjà dit, la mesure de  $T_{av}$  est souvent délicate et fait défaut.

### 8.1.2. Description des stratégies d'estimation pour les dispositifs de type disque chaud

Pour définir la stratégie d'estimation de  $\rho c_p$ ,  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$  à partir des dispositifs de type disque chaud, les remarques suivantes ont été prises en compte :

- a) L'allure de la réponse thermique d'un dispositif de type plan chaud réel est semblable à celle des dispositifs idéalisés. Aux temps longs, la vitesse d'échauffement est la même en tout point du dispositif. Par contre, elle diminue légèrement au cours du temps.
- b) L'observation en face arrière de l'échantillon est celle qui permet de s'affranchir au mieux de l'influence des paramètres de la sonde. A l'opposé, la mesure en face arrière de la sonde est fortement sensible aux variations des paramètres  $R_c$  et  $(mc)$ . Quant à la température en face avant, elle ne montre qu'une sensibilité modérée à ces deux paramètres.
- c) Aux temps longs, les dérivées par rapport au temps des températures  $T_{ar}$  et  $T_{av}$  ne sont sensibles qu'à  $\rho c_p$ . Leur différence  $T_{av} - T_{ar}$  réagit fortement aux perturbations de  $\lambda_z$  et plus modérément aux variations de  $R_c$ , les deux paramètres montrant une corrélation parfaite.
- d) Aux temps courts, la décorrélation entre les conductivités thermiques  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$  est significative pour les observations en face arrière de l'échantillon.

On voit apparaître à nouveau la face arrière de l'échantillon comme étant un lieu privilégié d'observation, sur lequel nous bâtirons l'estimation. Comme nous le verrons plus tard, la mesure en face avant (même si de moindre qualité) peut aider à l'initialisation des paramètres recherchés. Par conséquent, nous partons sur un schéma qui suppose l'observation de  $T_{ar}$  et  $T_{av}$ .

Contrairement aux dispositifs de type plan chaud, on ne pourra pas se contenter de travailler aux temps longs car les effets de la conductivité thermique  $\lambda_r$  n'apparaissent qu'aux temps courts. Ainsi, il sera dangereux de rester à la différence  $T_{av} - T_{ar}$  aux temps longs pour estimer  $\lambda_z$ . En effet, cette fois-ci,  $T_{av} - T_{ar}$  est également sensible à  $R_c$ . Enfin, la vitesse d'échauffement du dispositif aux temps long n'étant plus constante, les algorithmes de recherche de zéros seront exclus.

La stratégie d'estimation proposée se déroulera en trois étapes : a) filtrage des mesures ; b) initialisation des paramètres ; c) estimation de  $\rho c_p$ ,  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$ .

#### Filtrage des mesures

Nous avons constaté en pratique une sensibilité des estimations aux bruits de mesure bien plus importante que pour les dispositifs de type plan chaud. C'est la raison pour laquelle nous proposons une première étape de filtrage. En réalité, elle n'est pas nécessaire tant que l'écart type du bruit de mesure reste inférieur à 0.05°C environ. Autrement dit, pour des mesures de température à  $\pm 0.1^\circ\text{C}$ .

Des filtres simples, de type « moyenne mobile », se sont avérés suffisamment efficaces. Nous rappelons leur principe. On suppose des mesures réalisées avec un pas de temps d'échantillonnage  $\Delta t$  constant. On note  $s_i$  la valeur du signal  $s(t)$  enregistrée à l'instant  $t = i\Delta t$  et on désigne  $\bar{s}_i$  sa valeur après filtrage. Elle est donnée par :

$$\bar{s}_i = \frac{1}{n} \sum_{k=i-n/2}^{i+n/2} s_k$$

Le paramètre  $n$  du filtre est choisi de manière différente aux temps longs et aux temps courts. Aux temps longs, où l'on estimera  $\rho c_p$  en profitant du fait que  $dT_{ar} / dt$  n'est sensible qu'à ce paramètre dans ces plages de temps, les faits suivants ont été pris en compte pour décider de la valeur de  $n$ . Pour des bruits de mesure dont l'écart type est  $\sigma$ , l'écart type de la dérivé numérique de  $s(t)$  par rapport au temps et l'écart type de  $\bar{s}_i$  sont donnés par :

$$\sigma_{dérivée} \approx \frac{\sqrt{2}}{\Delta t} \sigma \quad \sigma_{filtrée} = \frac{\sigma}{\sqrt{n}}$$

respectivement. On voit que la dérivation amplifie le bruit de mesure, tandis que le filtre le réduit. L'écart type des dérivées numériques après filtrage sera :

$$\sigma_{dérivée, filtrée} = \frac{\sigma_{dérivée}}{\sqrt{n}} = \sqrt{\frac{2}{\Delta t^2 n}} \sigma$$

Le paramètre  $n$  est alors choisi pour que  $\sigma_{dérivée, filtrée} \approx \sigma$ . Il est donc égal à l'entier impair le plus proche de  $n = 2 / \Delta t^2$ . On notera que, dans cette plage de temps où le système suit une évolution thermique presque linéaire, le risque de biaiser les informations que l'on souhaite extraire est presque nul ; sauf, bien sûr, pour les  $n/2$  premières et  $n/2$  dernières mesures qu'il faudra écarter.

Aux temps courts, le choix de  $n$  est plus délicat et d'autres types de filtres seraient peut-être plus efficaces. Néanmoins, on a constaté en pratique qu'un choix de  $n$  sept/six fois environ plus petit que celui des temps longs aboutissait à un compromis biais/bruit convenable.

Dans les figures 8.1 et 8.2 nous montrons un exemple de filtrage. Les réponses thermiques en face avant et arrière de l'échantillon ont été simulées à l'aide d'un modèle de transfert, puis bruitées. Le pas de temps d'échantillonnage est  $\Delta t = 0.1s$  et l'écart type du bruit de mesure adopté est  $\sigma = 0.255^\circ C$ . Ceci correspond à des observations de très mauvaise qualité, avec des températures mesurées à  $\pm 0.5^\circ C$ . La valeur du paramètre  $n$  des filtres est alors :  $n_{temps\ longs} = 201$  et  $n_{temps\ courts} = 33$ . La figure 8.1 contient l'évolution thermique du dispositif (face avant et face arrière de l'échantillon) avant et après bruitage. La figure 8.2 permet de comparer les résultats des filtres appliqués aux signaux bruités avec les simulations/mesures avant bruitage.

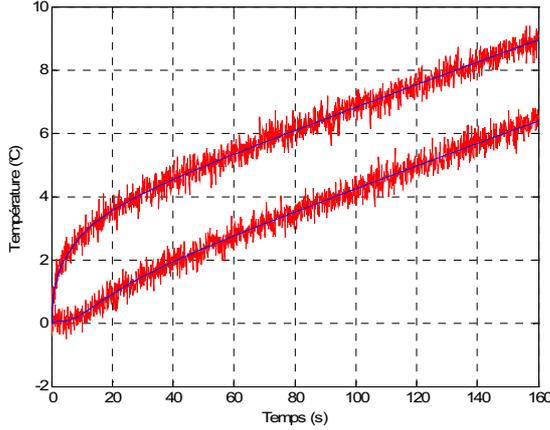


Figure 8.1 : Evolution de la température en faces avant et arrière d'un échantillon : non bruitée (bleu) et bruitée (rouge).

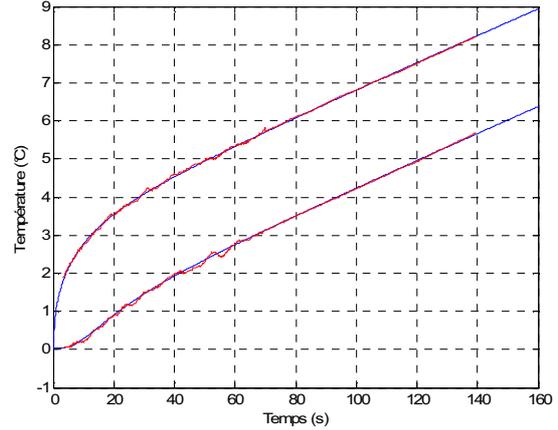


Figure 8.2 : Evolution de la température en faces avant et arrière d'un échantillon : mesure non bruitée (bleu) et mesure bruitée et filtrée (rouge).

### Initialisation des paramètres

L'initialisation des paramètres recherchés est plus délicate que pour les dispositifs de type plan chaud car la vitesse de réchauffement du dispositif aux temps longs n'est plus constante. On cherche les valeurs initiales de  $\rho c_p$ ,  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$  par minimisation du critère quadratique :

$$J = \int_{\text{temps longs}} [T_{ar}(t) - \tilde{T}_{ar}(t)]^2 dt + \int_{\text{temps longs}} [T_{av}(t) - \tilde{T}_{av}(t)]^2 dt$$

où  $T_{ar}$  et  $T_{av}$  représentent les mesures (après filtrage) et  $\tilde{T}_{ar}$  et  $\tilde{T}_{av}$  les simulations réalisées à l'aide du modèle de transferts. Nous utilisons pour ce faire l'algorithme de Gauss-Newton. On amorce la procédure en choisissant des valeurs « raisonnables » de  $\rho c_p$ ,  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$ .

On note  $\rho c_{p\text{ini}}$ ,  $\lambda_{r\text{ini}}$  et  $\lambda_{z\text{ini}}$  les résultats de cette étape.

### Estimation des paramètres

La procédure à suivre est semblable à la précédente, mais elle repose cette fois-ci sur l'ensemble des observations (temps courts et longs) réalisées en face arrière de l'échantillon. En effet, on cherche les valeurs de  $\rho c_p$ ,  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$  qui minimisent le critère quadratique :

$$J = \int_t [T_{ar}(t) - \tilde{T}_{ar}(t)]^2 dt$$

On utilise pour ce faire l'algorithme de Gauss-Newton avec  $\rho c_{p\text{ini}}$ ,  $\lambda_{r\text{ini}}$  et  $\lambda_{z\text{ini}}$  comme valeurs initiales des paramètres recherchés. Les valeurs des paramètres ainsi obtenues sont notées :  $\tilde{\rho c_p}$ ,  $\tilde{\lambda}_r$  et  $\tilde{\lambda}_z$ .

### 8.1.3. Procédure de validation des stratégies d'estimation

Dans les deux sections suivantes, nous allons valider les stratégies d'estimation de paramètres décrites ci-dessus. Pour ce faire, des mesures de la réponse thermique des dispositifs étudiés seront simulées à l'aide des modèles de transferts développés au chapitre 7. La création d'une expérience comporte :

- le choix de l'ensemble des paramètres géométriques et thermiques du dispositif ;
- la simulation de la réponse thermique en face avant et arrière de l'échantillon à l'aide du modèle de transferts correspondant ;
- le bruitage des simulations ci-dessus par addition d'un bruit blanc à variance  $\sigma^2$ .

Nous appellerons mesures le résultat de ces opérations. On note  $\rho c_p$ ,  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$  les valeurs des paramètres thermiques de l'échantillon utilisées pour créer l'expérience et  $T_{ar}$  et  $T_{av}$  les mesures en face arrière et avant de l'échantillon.

On note également  $\tilde{\rho c_p}$ ,  $\tilde{\lambda}_r$  et  $\tilde{\lambda}_z$  les résultats obtenus après application des stratégies d'estimation des paramètres décrites dans les sections 8.1.1 ou 8.1.2. Pareillement, on note  $\tilde{T}_{ar}$  et  $\tilde{T}_{av}$  la réponse thermique simulée avec ce nouveau jeu de paramètres. En supposant que les estimateurs des paramètres sont gaussiens et que les paramètres sont décorrélés entre eux, on calcule la variance de ces estimateurs par :

$$\sigma_{\theta}^2 = \sigma^2 \int_t \left( \frac{\partial \tilde{T}_{ar}}{\partial \theta} \right)^2 dt \quad \theta = \rho c_p, \tilde{\lambda}_r, \tilde{\lambda}_z$$

On définit les résidus comme étant la différence entre les mesures et les simulations :

$$\varepsilon(t) = T_{ar}(t) - \tilde{T}_{ar}(t)$$

et on note  $\sigma_{\varepsilon}$  et  $\varepsilon_{\max}$  l'écart type et la valeur maximale des résidus.

Le biais dans l'estimation des paramètres thermiques est mesuré par :

$$\text{biais} = \frac{|\theta - \tilde{\theta}|}{\theta} \times 100 \quad \theta = \rho c_p, \lambda_r, \lambda_z$$

Les estimations réalisées seront considérées de qualité quand :

- les résidus ont l'allure d'un bruit blanc (on pourrait ajouter un test statistique là-dessus) et que leur variance est du même ordre de grandeur que celle du bruit de mesure ;
- la valeur vraie des paramètres est contenue dans l'intervalle de certitude à 95% des estimateurs :  $\theta \in [\tilde{\theta} - 1.96\sigma_{\theta} \quad \tilde{\theta} + 1.96\sigma_{\theta}]$  ;
- l'incertitude dans les estimations reste limitée (petites valeurs de  $\sigma_{\theta}$ ).

## 8.2. Estimation de paramètres par la méthode de type plan chaud

Cette section est dédiée à l'évaluation des stratégies d'estimation décrites dans la section 8.1.1. On rappelle que pour les dispositifs de type plan chaud les seuls paramètres identifiables sont la capacité thermique  $\rho c_p$  et la conductivité thermique  $\lambda_z$  de l'échantillon.

Dans le tableau 7.8 du chapitre précédent sont décrits les conditions expérimentales (durée de l'expérience, puissance de chauffage), les paramètres thermiques propres au dispositif (propriétés des isolants, résistances de contact et coefficients convectifs) et l'ensemble des échantillons (5 au total) que nous allons utiliser pour nos tests.

Dans la première partie de cette section, nous apportons une première évaluation des stratégies 1T et 2T d'estimation. On se place dans un cadre où les mesures effectuées sont de qualité moyenne ( $\pm 0.1^\circ\text{C}$ ) et on suppose que les propriétés thermiques de la sonde ( $m_c$  et  $R_c$ ) sont connues avec certitude.

Dans la deuxième partie, nous analysons l'effet du bruit de mesure sur la qualité des estimations et nous évaluons le biais engendré par une mauvaise connaissance des paramètres de la sonde.

### 8.2.1. Application des stratégies 1T et 2T sur des mesures de qualité moyenne

Nous présentons dans les tableaux 8.1 à 8.4 les résultats de l'ensemble des estimations réalisées. Le tableau 8.1 contient les résultats obtenus en appliquant la stratégie 1T sur des expériences simulées en supposant  $R_c = 6.25 \times 10^{-4} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$  (forte résistance de contact entre l'échantillon et la sonde) ; tandis que le tableau 8.2 est issu de l'application de la stratégie 2T sur les mêmes expériences. Dans les tableaux 8.3 et 8.4 apparaissent les résultats des estimations effectuées sur des expériences simulées en supposant  $R_c = 6.25 \times 10^{-5} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$  (faible résistance de contact) et en appliquant les stratégies 1T et 2T respectivement.

Ces tableaux regroupent les valeurs de  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$  utilisées pour créer l'expérience, les valeurs  $\rho c_{p\text{ini}}$  et  $\lambda_{z\text{ini}}$  issues de l'étape d'initialisation et les valeurs  $\tilde{\rho c_p}$  et  $\tilde{\lambda_z}$  finalement estimées. Sont renseignés également les écarts types sur l'estimation des propriétés thermiques ( $\sigma_{\lambda_z}$ ,  $\sigma_{\rho c_p}$ ), l'écart type des résidus en face arrière ( $\sigma_\varepsilon$ ) et l'écart maximal ( $\varepsilon_{\text{max}}$ ).

On constate dans un premier temps que l'écart type en face arrière  $\sigma_\varepsilon$  est de l'ordre de  $0,05^\circ\text{C}$  pour un écart maximal inférieur à  $0,2^\circ\text{C}$  et ce, quel que soit l'échantillon étudié, la stratégie d'estimation ou la valeur de la résistance de contact utilisée. Par ailleurs, la figure 8.3, correspondant à l'échantillon n°1 (voir tableau 7.8, Chapitre 7), montre que les résidus obtenus s'apparentent fortement à un bruit blanc dont l'amplitude est inférieure ou égale à celle du bruit de mesure. Des

résultats semblables ont été obtenus pour l'ensemble des expériences réalisées (5 échantillons, 2 résistances de contact, 3 qualités de mesure) et des stratégies d'estimation (1T et 2T).

D'autre part, on apprécie que les biais sur l'estimation des propriétés thermiques sont compris entre 0,1 et 0,3% pour la stratégie 1T et entre 0,1 et 1% pour la stratégie 2T. Les faibles incertitudes sur l'estimation ( $\sigma_{\lambda_z}$ ,  $\sigma_{\rho c_p}$ ) indiquent la fiabilité des valeurs estimées. Par ailleurs, on vérifie pour chacun des échantillons testés que les valeurs réelles des propriétés sont bien contenues dans les intervalles d'incertitude à 95% définis par  $[\tilde{\lambda}_z - 1.96\sigma_{\lambda_z}; \tilde{\lambda}_z + 1.96\sigma_{\lambda_z}]$  et  $[\tilde{\rho c}_p - 1.96\sigma_{\rho c_p}; \tilde{\rho c}_p + 1.96\sigma_{\rho c_p}]$ .

L'ensemble de ces résultats écarte l'existence de biais sur les estimations et montre que la stratégie 1T est légèrement meilleure que la stratégie 2T.

Echantillon	(W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )				(J.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> )				(K)	
	$\lambda_z$	$\lambda_{z,ini}$	$\tilde{\lambda}_z$	$\sigma_{\lambda_z}$	$\rho_c$	$\rho_{c,ini}$	$\tilde{\rho}_c$	$\sigma_{\rho_c}$	$\sigma_\varepsilon$	$\varepsilon_{max}$
1	1,2	1.278	1.2001	0.0049	1270000	1377484	1269172	1198	0.0501	0.1686
2a	2	2.1132	1.9991	0.0081	1570000	1643109	1569977	1329	0.05	0.1727
2b	18,5	18.0868	18.5052	0.0709	1570000	1601516	1569303	1188	0.052	0.179
3a	4,5	4.6596	4.5003	0.0177	1550000	1584402	1548579	1228	0.052	0.1747
3b	32	33.0694	31.9924	0.1175	1550000	1565414	1553039	1174	0.0515	0.163

Tableau 8.1 : Propriétés thermiques estimées à partir de la stratégie 1T ( $R_c = 6.25 \times 10^{-4} \text{ K.m}^2.W^{-1}$ )

Echantillon	(W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )				(J.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> )				(K)	
	$\lambda_z$	$\lambda_{z,ini}$	$\tilde{\lambda}_z$	$\sigma_{\lambda_z}$	$\rho_c$	$\rho_{c,ini}$	$\tilde{\rho}_c$	$\sigma_{\rho_c}$	$\sigma_\varepsilon$	$\varepsilon_{max}$
1	1,2	1.278	1.1982	0.0011	1270000	1377484	1269172	1198	0.05	0.1727
2a	2	2.1132	1.9981	0.0048	1570000	1643109	1569977	1329	0.052	0.1747
2b	18,5	18.0868	18.4744	0.0188	1570000	1601516	1569303	1188	0.0515	0.1603
3a	4,5	4.6596	4.4665	0.0013	1550000	1584402	1548579	1227	0.0510	0.1658
3b	32	33.0694	32.4391	0.0355	1550000	1565414	1553039	1174	0.0508	0.1705

Tableau 8.2 : Propriétés thermiques estimées à partir de la stratégie 2T ( $R_c = 6.25 \times 10^{-4} \text{ K.m}^2.W^{-1}$ )

Echantillon	$(W.m^{-1}.K^{-1})$				$(J.m^{-3}.K^{-1})$				(K)	
	$\lambda_z$	$\lambda_{z,ini}$	$\tilde{\lambda}_z$	$\sigma_{\lambda_z}$	$\rho_c$	$\rho_{c,ini}$	$\tilde{\rho}_c$	$\sigma_{\rho_c}$	$\sigma_\varepsilon$	$\varepsilon_{max}$
1	1,2	1.3399	1.2003	0.005	1270000	1378072	1272185	1208	0.0511	0.1665
2a	2	2.175	2.0015	0.0079	1570000	1639454	1569232	1310	0.053	0.1849
2b	18,5	18.9501	18.5075	0.0722	1570000	1581524	1567641	1177	0.0505	0.1507
3a	4,5	4.7653	4.5072	0.0175	1550000	1578065	1546789	1196	0.0501	0.1671
3b	32	33.3449	32.0948	0.1235	1550000	1560421	1551497	1158	0.0513	0.1776

Tableau 8.3 : Propriétés thermiques estimées à partir de la stratégie 1T ( $R_c = 6.25 \times 10^{-5} K.m^2.W^{-1}$ )

Echantillon	$(W.m^{-1}.K^{-1})$				$(J.m^{-3}.K^{-1})$				(K)	
	$\lambda_z$	$\lambda_{z,ini}$	$\tilde{\lambda}_z$	$\sigma_{\lambda_z}$	$\rho_c$	$\rho_{c,ini}$	$\tilde{\rho}_c$	$\sigma_{\rho_c}$	$\sigma_\varepsilon$	$\varepsilon_{max}$
1	1,2	1.3399	1.2132	0.0017	1270000	1378072	1272185	1184	0.0511	0.1581
2a	2	2.175	1.9976	0.0016	1570000	1639454	1569232	1312	0.0527	0.1941
2b	18,5	18.9501	18.3706	0.0051	1570000	1581524	1567641	1179	0.0505	0.1511
3a	4,5	4.7653	4.4495	0.0021	1550000	1578065	1546789	1211	0.0501	0.1688
3b	32	33.3449	32.3925	0.0413	1550000	1560421	1551497	1153	0.0513	0.1686

Tableau 8.4 : Propriétés thermiques estimées à partir de la stratégie 2T ( $R_c = 6.25 \times 10^{-5} K.m^2.W^{-1}$ )

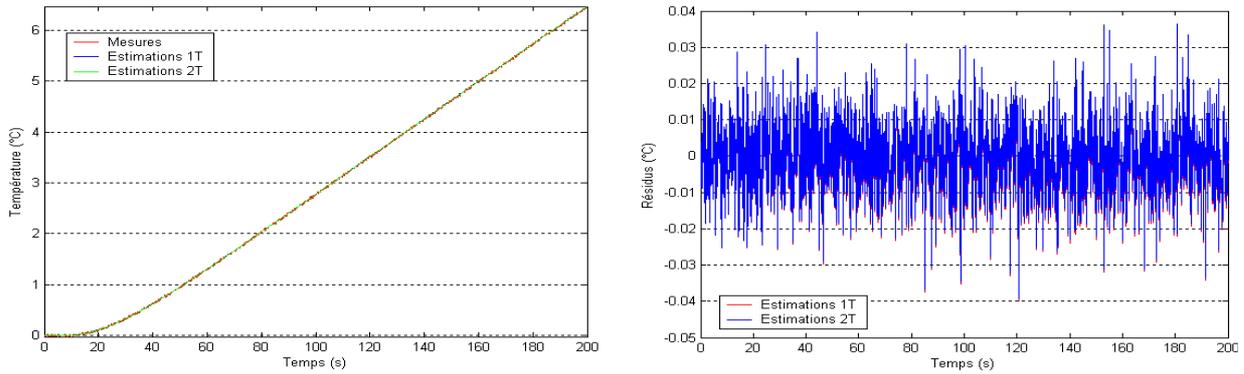


Figure 8.3a : Evolution thermique en face arrière (gauche) et résidus des estimations (droite). Ces résultats sont obtenus avec des mesures de température de bonne qualité ( $\pm 0,02^{\circ}\text{C}$ )

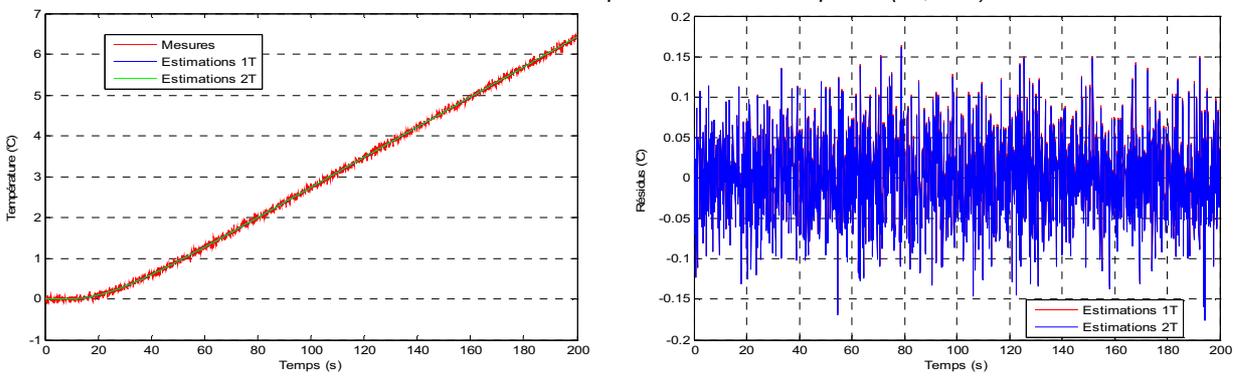


Figure 8.3b : Evolution thermique en face arrière (gauche) et résidus des estimations (droite). Ces résultats sont obtenus avec des mesures de température de qualité moyenne ( $\pm 0,1^{\circ}\text{C}$ )

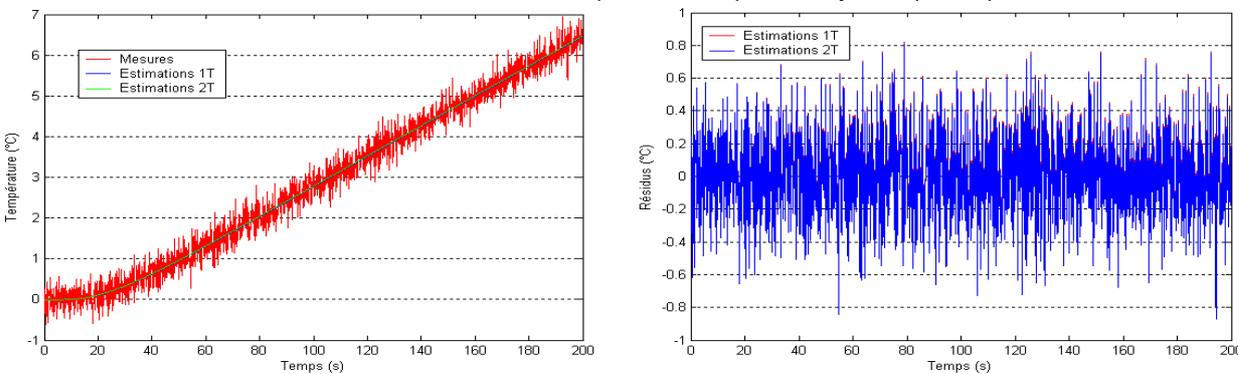


Figure 8.3c : Evolution thermique en face arrière (gauche) et résidus des estimations (droite). Ces résultats sont obtenus avec des mesures de température de mauvaise qualité ( $\pm 0,5^{\circ}\text{C}$ )

### 8.2.2. Analyse de l'effet du bruit de mesure et des paramètres de la sonde sur la qualité des estimations

Les études menées jusqu'à présent supposent que les propriétés de la sonde sont parfaitement connues. On ajoute maintenant un biais sur  $mc$  et  $R_c$  (on renseigne l'algorithme d'estimation avec des valeurs de ces paramètres perturbées de 0,5 et 10%), et on observe les biais occasionnés sur l'estimation des propriétés thermiques. Les résultats obtenus pour l'échantillon 2b, avec des mesures de température de qualité moyenne ( $\pm 0,1^\circ\text{C}$ ), sont présentés dans les figures 8.4 et 8.5.

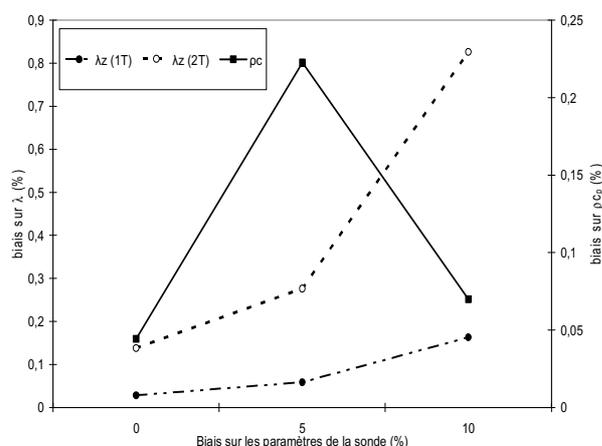


Figure 8.4 : Influence de la méconnaissance des propriétés de la sonde sur les estimations ( $R_c = 6.25 \times 10^{-4} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$ ).

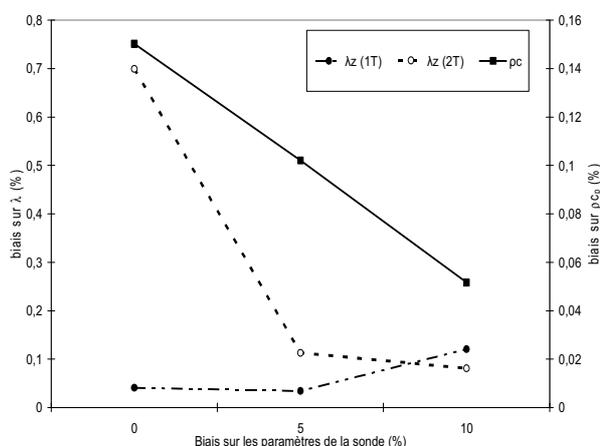


Figure 8.5 : Influence de la méconnaissance des propriétés de la sonde sur les estimations ( $R_c = 6.25 \times 10^{-5} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$ ).

Les résultats montrent qu'une méconnaissance des propriétés de la sonde de l'ordre de 10% engendre des biais d'estimations inférieurs à 0,8% sur la conductivité et inférieurs à 0,2% sur la capacité thermique (stratégie 2T). Ce biais est quasiment inexistant lorsque l'on emploie la stratégie 1T. On constate également que ces résultats sont indépendants de la valeur de la résistance de contact considérée. L'ensemble de ces observations met en avant la robustesse des stratégies d'estimation proposées (particulièrement la stratégie 1T) à une connaissance imparfaite de la sonde.

Les figures 8.6 et 8.7 permettent d'évaluer les biais occasionnés par le bruit de mesure ( $\pm 0,02^\circ\text{C}$  : bonne qualité ;  $\pm 0,1^\circ\text{C}$  : qualité moyenne ;  $\pm 0,5^\circ\text{C}$  : qualité médiocre). Dans cette étude, les propriétés de la sonde sont supposées parfaitement connues.

De manière générale, on constate que plus la qualité de la mesure se dégrade, plus le biais sur les estimations augmente. Ce biais reste très faible pour des mesures de bonne ou moyenne qualité. Pour une qualité de mesure médiocre, les biais dans la conductivité et la capacité thermiques sont de l'ordre de 7 et 1 % respectivement, pour des estimations issues de la stratégie 2T. L'estimation selon la stratégie 1T reste quant à elle très robuste ; même avec une qualité de mesure médiocre ( $\pm 0,5^\circ\text{C}$ ) les biais sont négligeables. Encore une fois, la valeur de la résistance de contact n'a que très peu d'influence sur la qualité des estimations.

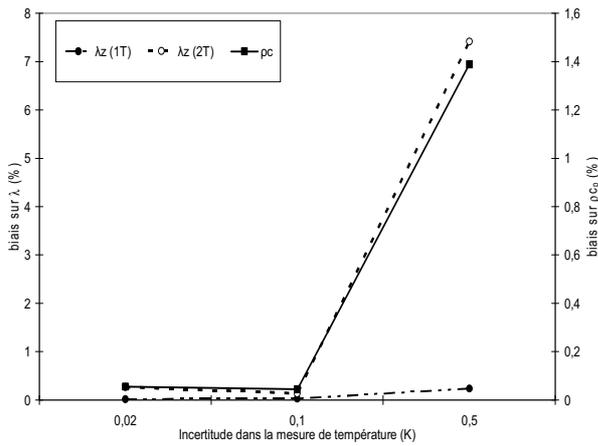


Figure 8.6 : Influence du bruit de mesure sur la qualité des estimations ( $R_c = 6.25 \times 10^{-4} K.m^2.W^{-1}$ ).

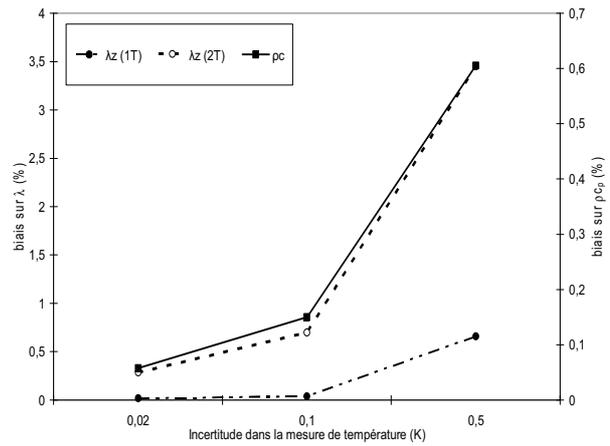


Figure 8.7 : Influence du bruit de mesure sur la qualité des estimations ( $R_c = 6.25 \times 10^{-5} K.m^2.W^{-1}$ ).

### 8.3. Estimation de paramètres par la méthode de type disque chaud

Cette section est dédiée à l'évaluation de la stratégie d'estimation de  $\rho c_p$ ,  $\lambda_z$  et  $\lambda_x$  décrite dans la section 8.1.2. Dans le tableau 7.10 du chapitre précédent on décrit les conditions expérimentales (durée de l'expérience, puissance de chauffage), les paramètres thermiques propres au dispositif (propriétés des isolants, résistances de contact et coefficients convectifs) et l'ensemble des échantillons que nous allons utiliser. Nous rappelons que les échantillons orthotropes sont testés en faisant coïncider l'axe de compression du matériau tantôt avec l'axe  $O\bar{z}$  du dispositif, tantôt avec l'axe  $O\bar{r}$ .

Dans la première partie de cette section, nous faisons une première évaluation de la stratégie d'estimation proposée. Pour ce faire, on travaille avec des mesures de meilleure qualité que dans le cas précédent ( $\pm 0.05^\circ\text{C}$ ) pour éviter le filtrage. Les propriétés thermiques de la sonde ( $mc$  et  $R_c$ ) sont supposées connues avec certitude.

Comme pour les dispositifs de type plan chaud, dans la deuxième partie, nous analysons l'effet du bruit de mesure sur la qualité des estimations et nous évaluons le biais induit par une mauvaise connaissance des paramètres de la sonde.

#### 8.3.1. Application sur des mesures de bonne qualité

Nous présentons dans les tableaux 8.5 et 8.6 les résultats des estimations réalisées. Le premier contient les résultats correspondant à des expériences simulées en supposant  $R_c = 6.25 \times 10^{-4} K.m^2.W^{-1}$  (forte résistance de contact entre l'échantillon et la sonde) ; tandis que dans le deuxième apparaissent les résultats des estimations effectuées sur des expériences simulées en supposant  $R_c = 6.25 \times 10^{-5} K.m^2.W^{-1}$  (faible résistance de contact).

Ces tableaux regroupent les valeurs de  $\rho c_p$ ,  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$  utilisées pour créer l'expérience, les valeurs  $\rho c_{p\,ini}$ ,  $\lambda_{r\,ini}$  et  $\lambda_{z\,ini}$  fournies par l'étape d'initialisation et les valeurs  $\tilde{\rho c}_p$ ,  $\tilde{\lambda}_r$  et  $\tilde{\lambda}_z$  finalement estimées. Sont inclus également les écarts types sur l'estimation des propriétés thermiques ( $\sigma_{\lambda_r}$ ,  $\sigma_{\lambda_z}$ ,  $\sigma_{\rho c_p}$ ), l'écart type des résidus en face arrière ( $\sigma_\varepsilon$ ) et l'écart maximal ( $\varepsilon_{\max}$ ).

Tout d'abord, on constate que l'écart type des résidus  $\sigma_\varepsilon$  est toujours inférieur à 0,03°C et que l'écart maximal se situe en dessous de 0,15°C. Par ailleurs, la figure 8.8 montre l'absence de tendances dans les résidus obtenus ; ils ressemblent fortement à des bruits blancs similaires aux bruits de mesure imposés. Des résultats semblables ont été obtenus pour l'ensemble des expériences analysées (5 échantillons, 2 résistances de contact, 4 qualités de mesures).

Ces résultats sont relayés par de faibles incertitudes sur l'estimation des paramètres (voir valeurs de  $\sigma_{\lambda_z}$ ,  $\sigma_{\lambda_r}$  et  $\sigma_{\rho c_p}$  dans les tableaux) qui témoignent de la fiabilité des estimations. Les intervalles d'incertitude les plus larges correspondent aux échantillons ayant la plus forte conductivité thermique (3a et 3b). Néanmoins, comme pour le plan chaud, ces intervalles contiennent toujours les valeurs vraies des propriétés thermiques.

L'ensemble de ces résultats atteste de la qualité des estimations en termes aussi bien de fiabilité que de justesse.

Echantillon/ configuration	$(W.m^{-1}.K^{-1})$										$(J.m^{-3}.K^{-1})$					$(K)$	
	$\lambda_r$	$\lambda_{r,ini}$	$\tilde{\lambda}_r$	$\sigma_{\lambda_r}$	$\lambda_z$	$\lambda_{z,ini}$	$\tilde{\lambda}_z$	$\sigma_{\lambda_z}$	$\rho c_p$	$\rho c_{p,ini}$	$\tilde{\rho c}_p$	$\sigma_{\rho c_p}$	$\sigma_\varepsilon$	$\varepsilon_{max}$			
1	1.2	1.1758	1.1966	0.0074	1,2	1.2215	1.1983	0.006	1270000	1266928	1270539	1434	0.0252	0.1			
2a	18.5	18.2428	18.2428	0.0875	2	2.0256	2.0256	0.008	1570000	1567539	1567539	1202	0.0268	0.0787			
2b	2	2.0217	1.9516	0.0074	18,5	18.2594	18.5040	0.065	1570000	1573511	1570922	1396	0.0269	0.0693			
3a	32	32.8402	32.1485	0.1383	4,5	4.3734	4.5019	0.017	1550000	1555890	1549563	1220	0.0259	0.0637			
3b	4.5	5.4	4.4429	0.0198	32	25.6	32.0195	0.127	1550000	1646757	1551282	1192	0.0264	0.1134			

Tableau 8.5 : Propriétés thermiques estimées et qualité de l'estimation ( $R_c = 6.25 \times 10^{-4} K.m^2.W^{-1}$ ).

Echantillon/ configuration	$(W.m^{-1}.K^{-1})$										$(J.m^{-3}.K^{-1})$					$(K)$	
	$\lambda_r$	$\lambda_{r,ini}$	$\tilde{\lambda}_r$	$\sigma_{\lambda_r}$	$\lambda_z$	$\lambda_{z,ini}$	$\tilde{\lambda}_z$	$\sigma_{\lambda_z}$	$\rho c_p$	$\rho c_{p,ini}$	$\tilde{\rho c}_p$	$\sigma_{\rho c_p}$	$\sigma_\varepsilon$	$\varepsilon_{max}$			
1	1.2	1.1831	1.1823	0.0077	1,2	1.2173	1.2005	0.0074	1270000	1267875	1270444	1305	0.0259	0.0857			
2a	18.5	18.7928	18.2289	0.0852	2	1.9802	2.0071	0.0089	1570000	1570996	1569697	1334	0.0304	0.0559			
2b	2	2.0199	2.0199	0.0101	18,5	18.1066	18.1066	0.0853	1570000	1524205	1524205	1181	0.0257	0.1311			
3a	32	31.7281	31.6928	0.1565	4,5	4.5431	4.5102	0.0203	1550000	1548143	1550574	1132	0.0265	0.0972			
3b	4.5	4.5151	4.4076	0.0209	32	31.9022	32.1397	0.1417	1550000	1550630	1550389	1146	0.027	0.0581			

Tableau 8.6 : Propriétés thermiques estimées et qualité de l'estimation ( $R_c = 6.25 \times 10^{-5} K.m^2.W^{-1}$ ).

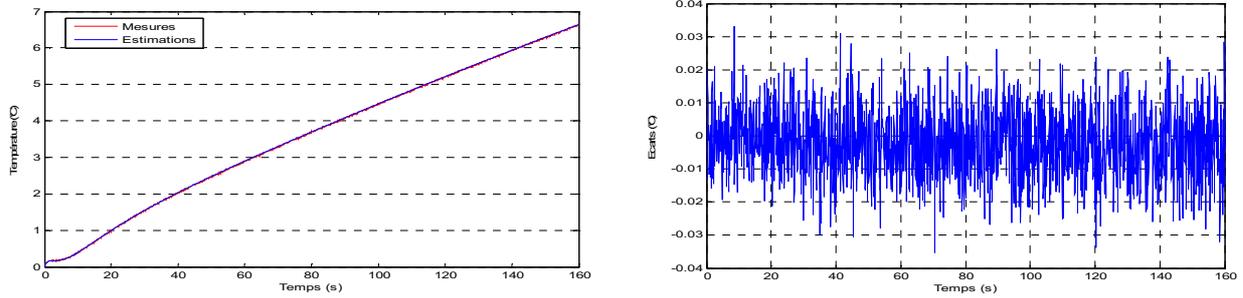


Figure 8.8a : Evolution thermique en face arrière (gauche) et résidu des estimations (droite).  
Cas où le bruit de mesure est de  $\pm 0,02^{\circ}\text{C}$ .

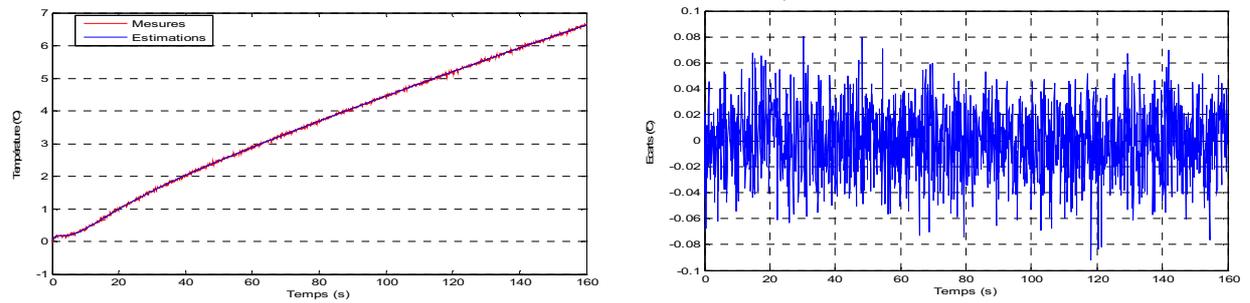


Figure 8.8b : Evolution thermique en face arrière (gauche) et résidu des estimations (droite).  
Cas où le bruit de mesure est de  $\pm 0,05^{\circ}\text{C}$ .

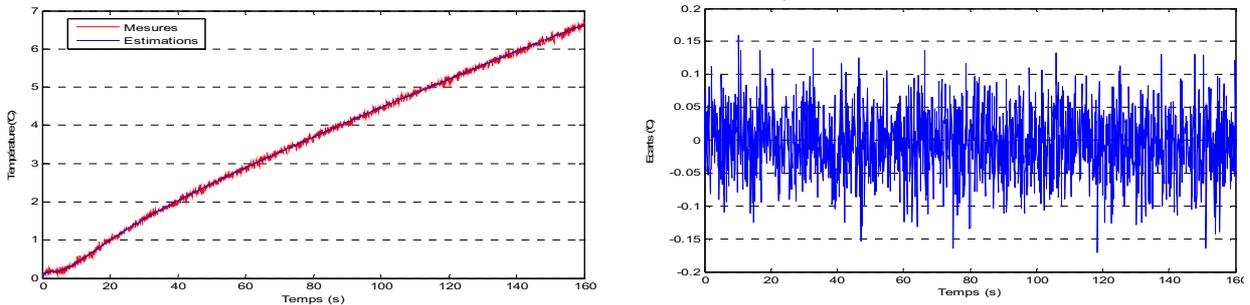


Figure 8.8c : Evolution thermique en face arrière (gauche) et résidu des estimations (droite).  
Cas où le bruit de mesure est de  $\pm 0,01^{\circ}\text{C}$ .

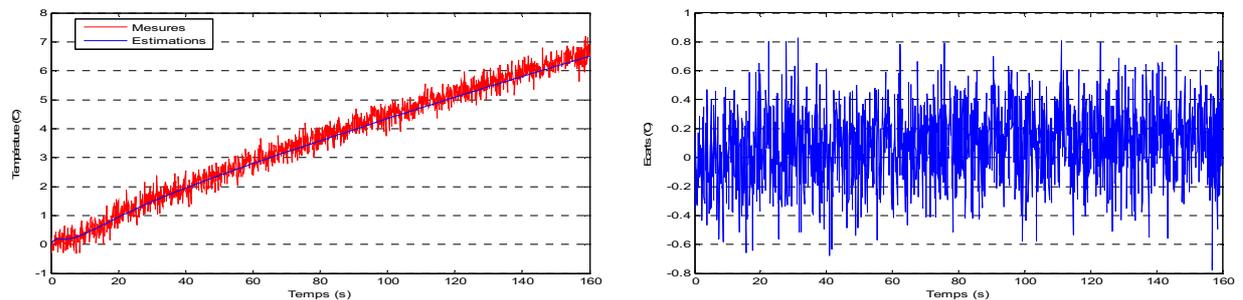


Figure 8.8d : Evolution thermique en face arrière (gauche) et résidu des estimations (droite).  
Cas où le bruit de mesure est de  $\pm 0,05^{\circ}\text{C}$ .

### 8.3.2. Analyse de l'effet du bruit de mesure et des paramètres de la sonde sur la qualité des estimations

On effectue à présent l'étude de l'influence des paramètres de la sonde chauffante et celle du bruit de mesure sur les estimations. Les figures 8.9 et 8.10 présentent les résultats obtenus (échantillon n°1) en introduisant des biais de 0, 5 et 10% dans les paramètres de la sonde chauffante et en fixant à  $\pm 0,05^\circ\text{C}$  la qualité des mesures de  $t$  température.

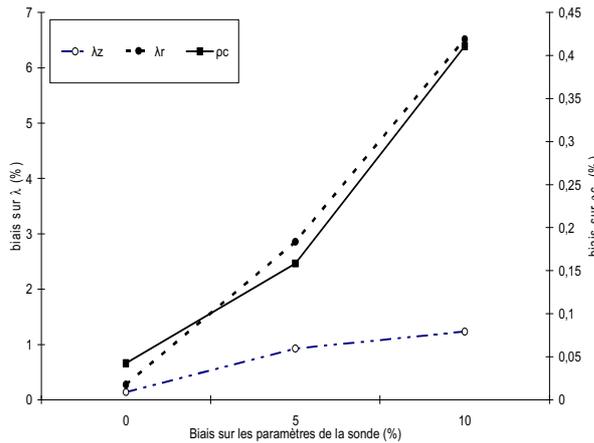


Figure 8.9 : Influence des propriétés de la sonde sur les estimations ( $R_c = 6.25 \times 10^{-4} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$ ).

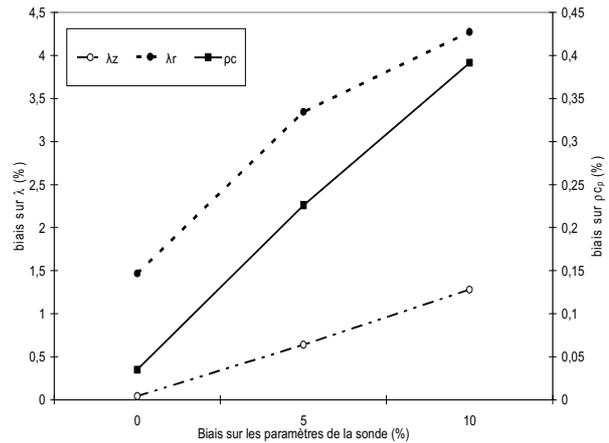


Figure 8.10 : Influence des propriétés de la sonde sur les estimations ( $R_c = 6.25 \times 10^{-5} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$ ).

Ces figures montrent que, comme pour le plan chaud, la méconnaissance des propriétés de la sonde n'a pas d'influence significative sur l'estimation de la capacité thermique de l'échantillon et ce, quelle que soit la résistance de contact considérée. Elle engendre toutefois des biais de 4 à 7 % sur l'estimation de  $\tilde{\lambda}_r$  et un biais d'environ 1 % sur l'estimation de  $\tilde{\lambda}_z$ . Cependant, ces biais restent acceptables et confirment une fois de plus la robustesse de la méthode d'estimation employée.

On suppose maintenant que les propriétés de la sonde sont parfaitement connues et on étudie les biais d'estimation occasionnés par le bruit de mesure ( $\pm 0,02^\circ\text{C}$  : bonne qualité ;  $\pm 0,05^\circ\text{C}$  : assez bonne qualité ;  $\pm 0,1^\circ\text{C}$  : qualité moyenne ;  $\pm 0,5^\circ\text{C}$  : qualité médiocre). Les résultats sont illustrés dans les figures 8.11 et 8.12.

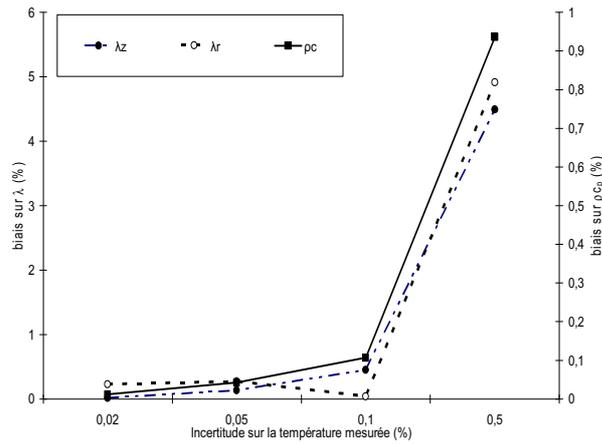


Figure 8.11 : Influence de l'incertitude de la mesure de température sur les propriétés estimées ( $R_c = 6.25 \times 10^{-4} K.m^2.W^{-1}$ ).

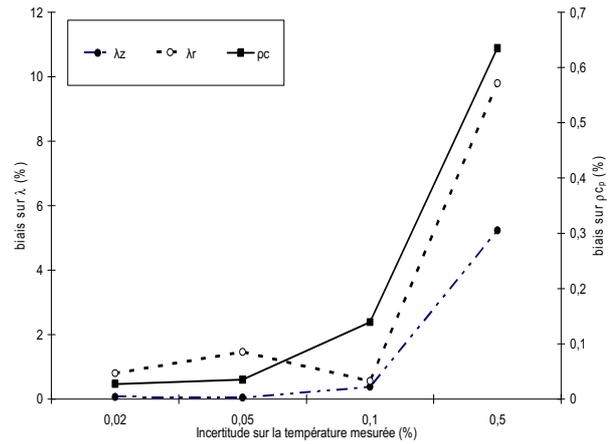


Figure 8.12 : Influence de l'incertitude de la mesure de température sur les propriétés estimées ( $R_c = 6.25 \times 10^{-5} K.m^2.W^{-1}$ ).

De manière générale, les biais augmentent avec la dégradation de la qualité des mesures. Néanmoins, ils restent très faibles pour des qualités bonnes, assez bonnes et moyennes. Pour une qualité de mesure médiocre ( $\pm 0,5^\circ C$ ), les biais sur les conductivités thermiques se situent entre 6 et 12 % ce qui reste relativement satisfaisant.

En résumé, la stratégie d'estimation employée semble assez robuste à la mauvaise connaissance des paramètres de la sonde et aux bruits de mesure.

Enfin, on a remarqué, sans arriver à l'expliquer, que l'estimation est sensible à l'initialisation des paramètres et peut converger vers des minima locaux lorsque la conductivité  $\lambda_r$  est beaucoup plus élevée que la conductivité  $\lambda_z$ . Ainsi, on peut trouver parfois des anomalies dans les tendances des figures représentant le biais sur les paramètres thermiques face aux bruits de mesures ou aux perturbations des paramètres de la sonde. Voici un exemple où le biais sur  $\lambda_r$  et  $\lambda_z$  prend une valeur excessive, en dehors de la tendance générale, pour une précision de  $\pm 0,05^\circ C$  dans la mesure de température.

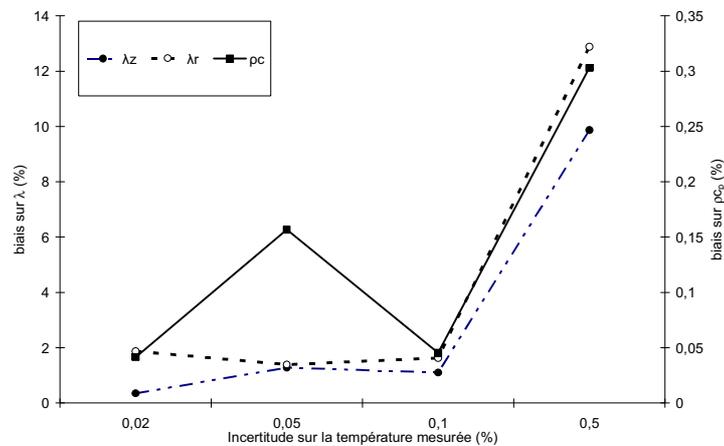


Figure 8.13 : Influence du bruit de mesure sur les estimations (échantillon 2a ;  $R_c = 6.25 \times 10^{-5} K.m^2.W^{-1}$ ).

## 8.4. Exemple d'application sur des mesures réelles

Cette dernière section est dédiée à la caractérisation thermique des matériaux sur des expériences réelles. Malheureusement, par manque de temps, nous n'avons pu tester que la caractérisation dans des dispositifs de type plan chaud. Pour illustrer la qualité des résultats obtenus, nous avons choisi 3 matériaux « standards » et 3 composites graphite/sel balayant une large plage de conductivités thermiques. Le tableau ci-dessous décrit les échantillons testés et les conditions expérimentales utilisées. Le pas de temps d'échantillonnage est de 0.4s dans tous les cas.

		$L(m)$	$S(m^2)$	$P(W)$	$t_f(s)$	Observations
Matériaux « standard »	Titane	0.0167	0.000625	1.282	120	$T_{ar}$ $T_{av}$ $T_{sd}$
	acier	0.02402	0.000625	1.846	120	$T_{ar}$ $T_{av}$ $T_{sd}$
	aluminium	0.0239	0.000625	1.846	120	$T_{ar}$ $T_{av}$ $T_{sd}$
Composites graphite/sel <sup>§§§</sup>	GNE10	0.0206	0.000625	0.821	120	$T_{ar}$ $T_{av}$ $T_{sd}$
	SFG05	0.009	0.01	8.213	120	$T_{ar}$ $T_{sd}$
	SFG25	0.02	0.000625	1.038	120	$T_{ar}$ $T_{sd}$

Tableau 8.7 : Echantillons testés et conditions expérimentales :  $L$  = épaisseur ;  $S$  = surface ;  $P$  = puissance de chauffage appliquée ;  $t_f$  = durée de l'expérience.

Nous analysons d'abord la cohérence des mesures réalisées (partie 8.4.1) et nous présentons ensuite les résultats des estimations (partie 8.4.2).

### 8.4.1. Présentation des mesures et analyse de cohérence

Les figures 8.14 à droite montrent les évolutions thermiques observées lors des expériences réalisées avec les matériaux standards, tandis que les figures 8.15 à droite contiennent les résultats des mesures effectuées sur des composites graphite/sel. Dans les mêmes figures à gauche, nous avons représenté les dérivées par rapport au temps (estimation numérique) des températures observées.

Les observations ont été faites avec une précision de  $\pm 0,05^\circ\text{C}$  environ, sauf pour le test sur l'échantillon SFG05 où le bruit de mesure était plus fort ( $\pm 0,1^\circ\text{C}$ ). Nous constatons partout des comportements logiques, dans le sens où  $T_{ar} < T_{av} < T_{sd}$  à tout instant. Aussi, les dérivées des températures par rapport au temps deviennent constantes aux temps longs et « identiques ». Toutefois, quelques anomalies de mesure (petits sauts) sont à signaler sur le test du SFG05 (voir Figures 8.15b et 8.17b à gauche).

Toujours dans le but d'analyser la cohérence entre les mesures, nous avons réalisé deux estimations préliminaires de la capacité et de la conductivité thermiques des échantillons. Ces estimations se font aux temps longs en supposant des comportements idéaux :

<sup>§§§</sup> **GNE10** : Matériaux obtenus par compression uniaxial à froid d'un mélange de 10%*m* de particules de Graphite Naturel Expansé (GNE) et de  $\text{KNO}_3/\text{NaNO}_3$  en poudre. **SFG05 (resp.SFG25)** : Matériaux obtenus par dispersion de 5%*m* (resp. 25%*m*) de graphite SFG 75 dans le  $\text{KNO}_3/\text{NaNO}_3$ .

- La première exploite les mesures en face arrière de l'échantillon. A partir de la droite de régression :

$$T_{ar} \equiv T_{t \rightarrow \infty}(L, t) = -\frac{1}{6} \frac{\varphi L}{\lambda_z} + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t \quad \text{avec : } \varphi = P/S$$

on calcule les valeurs de  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$ . On les note  $\rho c_{p ar}$  et  $\lambda_{z ar}$ .

- La deuxième utilise les mesures en face avant de l'échantillon (quand elles sont disponibles). A partir de la droite de régression :

$$T_{av} \equiv T_{t \rightarrow \infty}(L, t) = \frac{1}{3} \frac{\varphi L}{\lambda_z} + \frac{\varphi}{\rho c_p L} t \quad \text{avec : } \varphi = P/S$$

on calcule alors les valeurs de  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$ . On les note  $\rho c_{p av}$  et  $\lambda_{z av}$ .

Dans le tableau 8.8 sont données les valeurs de  $\rho c_{p ar}$ ,  $\lambda_{z ar}$ ,  $\rho c_{p av}$  et  $\lambda_{z av}$  calculées pour l'ensemble des échantillons. On observe que les valeurs de  $\rho c_{p ar}$  et  $\rho c_{p av}$  sont concordantes dans tous les cas. Par contre, des différences significatives entre  $\lambda_{z ar}$  et  $\lambda_{z av}$  sont constatées. Pour les matériaux « standards », elles sont d'autant plus importantes que la conductivité thermique est élevée. On constate des valeurs de  $\lambda_{z av}$  toujours en dessous de  $\lambda_{z ar}$ , ce qui témoignerait de l'existence d'une résistance thermique de contact entre le capteur de température et la surface en face avant de l'échantillon\*\*\*\*. Pour le composite GNE10, la valeur de  $\lambda_{z av}$  est aberrante. La cause de ceci est certainement liée à la forte hétérogénéité de ces matériaux, qui rend encore plus délicate la mesure de température en face avant de l'échantillon.

		$\rho c_{p ar} \times 10^6$ ( $J.m^{-3}.K^{-1}$ )	$\rho c_{p av} \times 10^6$ ( $J.m^{-3}.K^{-1}$ )	$\lambda_{z ar}$ ( $W.m^{-1}.K^{-1}$ )	$\lambda_{z av}$ ( $W.m^{-1}.K^{-1}$ )
Matériaux « standard »	Titane TA6V	2.63	2.60	6.71	5.02
	Acier A60	3.72	3.72	42.51	32.25
	Aluminium AU4G	2.55	2.55	107.85	75.22
Composites graphite/sel	GNE10	1.78	1.80	10.38	41.96
	SFG5	1.94	-	1.85	-
	SFG25	1.67	-	8.01	-

Tableau 8.8 : Estimations préliminaires de  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$  à partir des observations en face avant et arrière de l'échantillon.

En conclusion, on ne peut accorder que très peu de confiance aux mesures de température effectuées en face avant de l'échantillon. Les estimations seront donc réalisées sur les observations en face arrière.

\*\*\*\* Les mesures ont été réalisées avec des thermocouples à contact séparé.

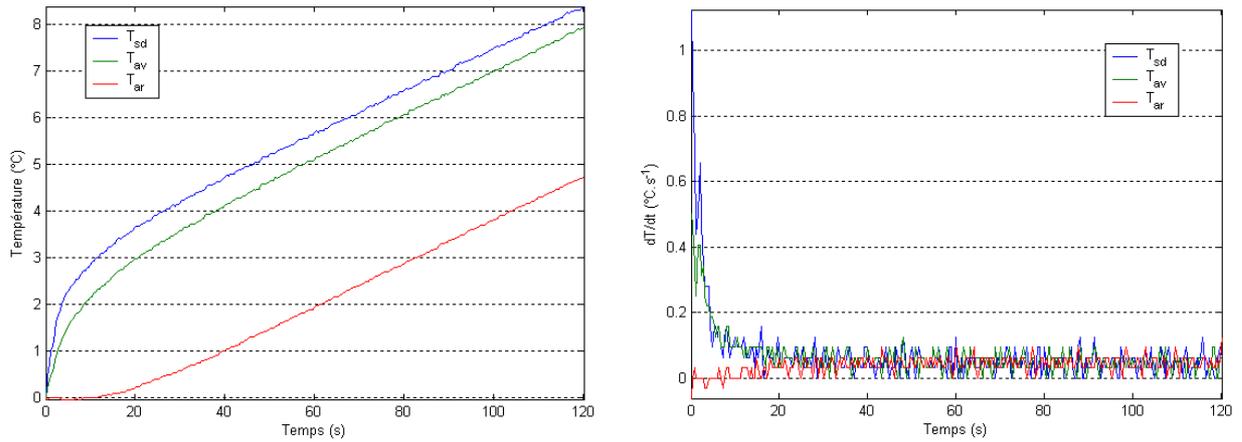


Figure 8.14a : Résultats des mesures effectuées sur le titane TA6V. Les températures observées apparaissent à droite, tandis que leurs dérivées par rapport au temps sont représentées à gauche.

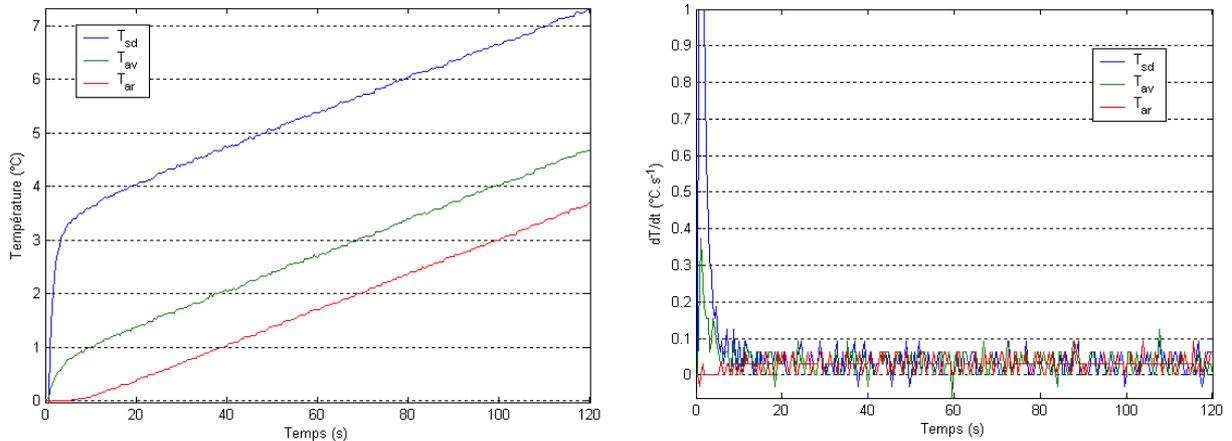


Figure 8.14b : Résultats des mesures effectuées sur l'acier A60. Les températures observées apparaissent à droite, tandis que leurs dérivées par rapport au temps sont représentées à gauche.

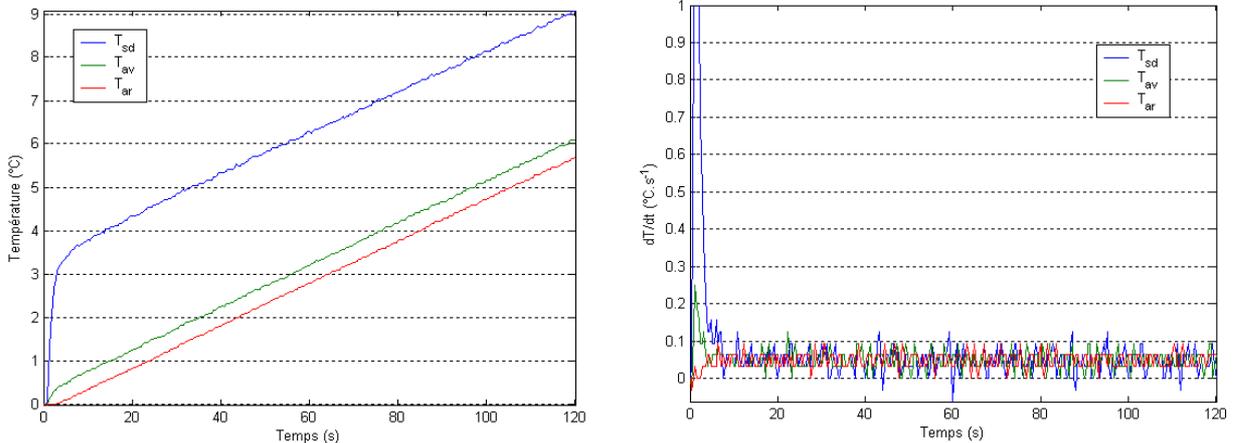


Figure 8.14c : Résultats des mesures effectuées sur l'aluminium AU4G. Les températures observées apparaissent à droite, tandis que leurs dérivées par rapport au temps sont représentées à gauche.

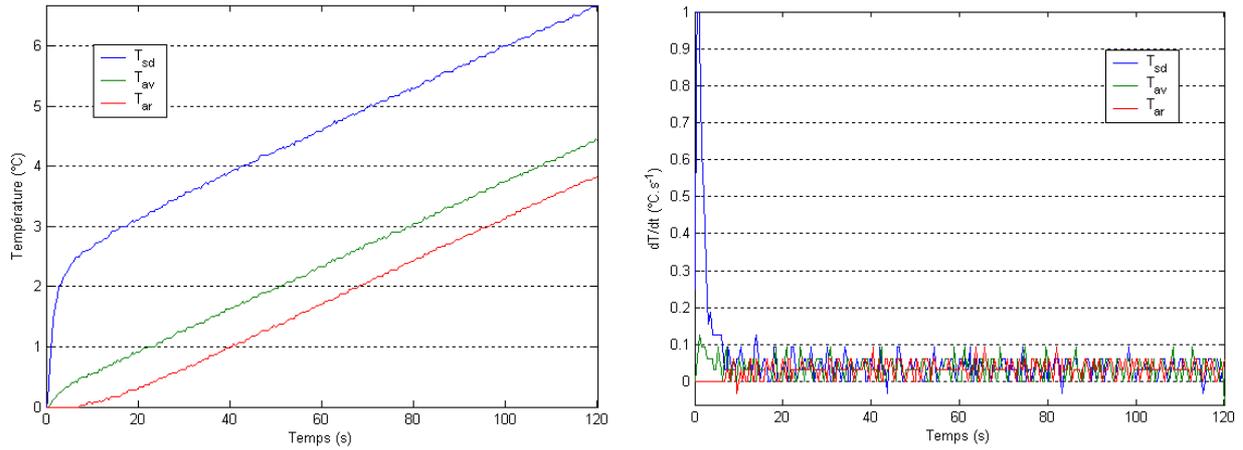


Figure 8.15a : Résultats des mesures effectuées sur le GNE10. Les températures observées apparaissent à droite, tandis que leurs dérivées par rapport au temps sont représentées à gauche.

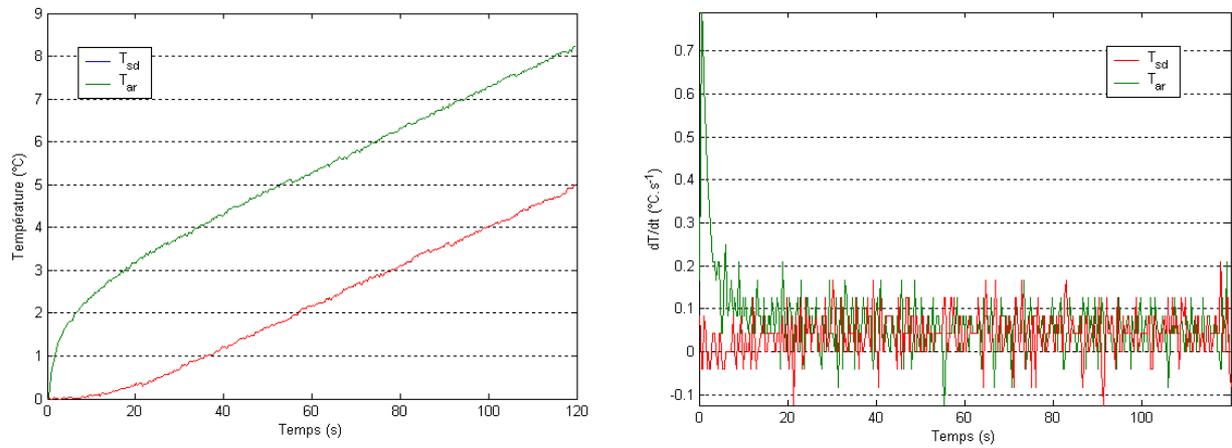


Figure 8.15b : Résultats des mesures effectuées sur le SFG05. Les températures observées apparaissent à droite, tandis que leurs dérivées par rapport au temps sont représentées à gauche.

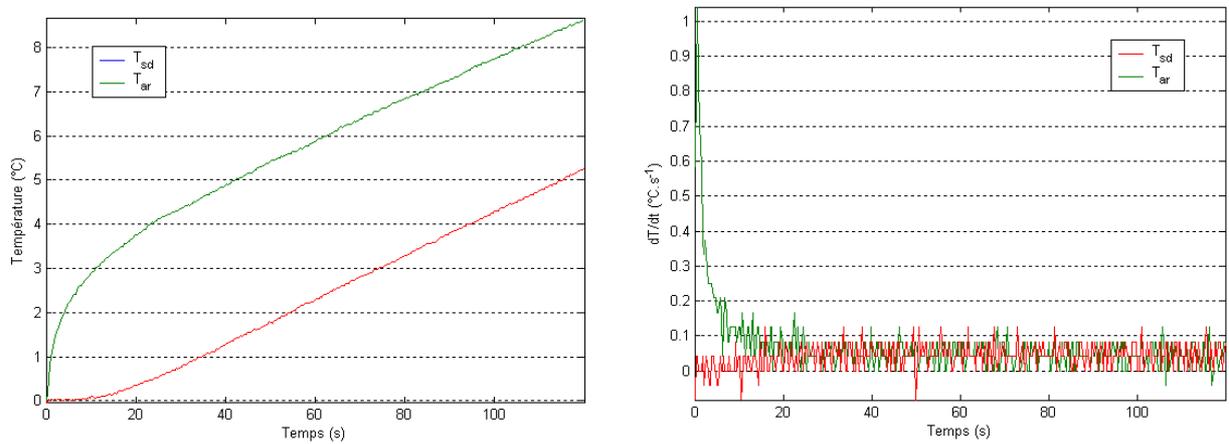


Figure 8.15c : Résultats des mesures effectuées sur le SFG25. Les températures observées apparaissent à droite, tandis que leurs dérivées par rapport au temps sont représentées à gauche.

### 8.4.2. Caractérisation des matériaux

Nous avons appliqué la stratégie 1T d'estimation aux mesures présentées ci-dessus. Le tableau 8.9 synthétise les résultats obtenus. Il contient les valeurs de  $\lambda_{z\text{ini}}$  et  $\rho c_{p\text{ini}}$  issues de l'étape d'initialisation, les valeurs  $\tilde{\lambda}_z$  et  $\tilde{\rho c}_p$  estimées, l'écart type des estimateurs ( $\sigma_{\rho c_p}, \sigma_{\lambda_z}$ ), l'écart type des résidus en face arrière ( $\sigma_\varepsilon$ ) et leur valeur maximale ( $\varepsilon_{\text{max}}$ ).

Echantillon	(W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )			(J.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> )			(K)	
	$\lambda_{z\text{ini}}$	$\tilde{\lambda}_z$	$\sigma_{\lambda_z}$	$\rho c_{p\text{ini}}$	$\tilde{\rho c}_p$	$\sigma_{\rho c_p}$	$\sigma_\varepsilon$	$\varepsilon_{\text{max}}$
Titane TA6V	6.76	6.48	0.0821	2636777	2614385	8064	0.0202	0.0549
Acier A60	42.11	41.1	0.8498	3722678	3726460	11742	0.0124	0.0409
Aluminium AU4G	114.5	102.01	5.566	2557094	2541778	4877	0.0178	0.0523
GNE10	10.9	10.46	0.2338	1794757	1760057	6070	0.0147	0.0504
SFG05	2.11	1.86	0.0249	1981256	1981113	4817	0.0461	0.1434
SFG25	8.57	8.2	0.0983	1688289	1648853	3665	0.0286	0.0884

Tableau 8.9 : Propriétés thermiques estimées et qualité de l'estimation.

Les figures 8.16 et 8.17 à droite montrent les observations de température réalisées en face arrière et les simulations effectuées avec les valeurs de capacité et conductivité thermiques estimées. Dans les mêmes figures à gauche, on montre les écarts entre simulations et mesures (résidus).

On constate tout d'abord des résidus de faible amplitude, avec des écarts maximaux entre simulations et mesures de  $\pm 0.05^\circ\text{C}$  environ pour tous les échantillons sauf pour le SFG05, dont le test comportait un bruit de mesure plus important. Aux temps longs, les résidus ne montrent pas de tendances et ressemblent à des bruits blancs ; par contre, aux temps courts on surestime en général la température en face arrière. De ce fait, on peut imaginer que l'estimation de la conductivité thermique puisse être légèrement biaisée.

Comme pour les tests réalisés sur des expériences numériques, on remarque la fiabilité des estimateurs. L'incertitude dans l'estimation de la conductivité thermique (voir valeurs de  $\sigma_{\lambda_z}$ ) augmente avec la valeur de celle-ci. A 95% de certitude, la conductivité de l'échantillon en aluminium est de  $102 \pm 11$  (W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>) ; tandis que celle de l'échantillon SFG05 est de  $1.86 \pm 0.05$  (W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>). Quant aux estimations de la capacité thermique, il n'y a pas de corrélation apparente entre l'incertitude et la valeur du paramètre.

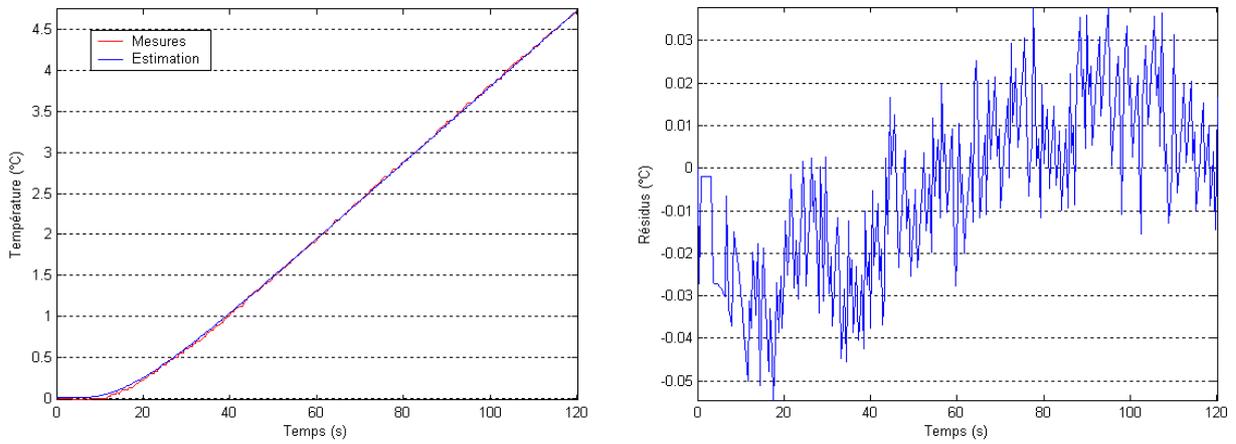


Figure 8.16a : Résultats des mesures effectuées sur le titane TA6V. Mesures et simulations à droite et résidus à gauche.

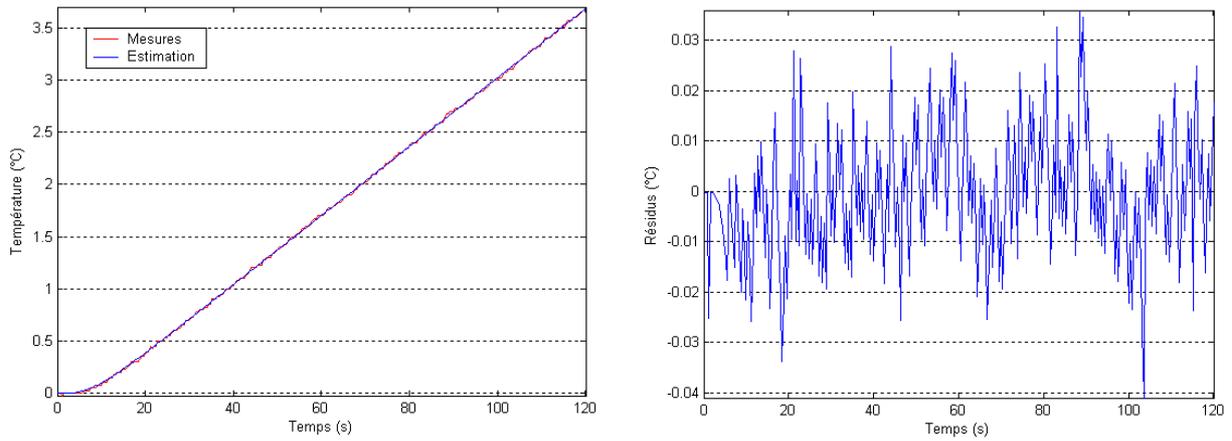


Figure 8.16b : Résultats des mesures effectuées sur l'acier A60. Mesures et simulations à droite et résidus à gauche.

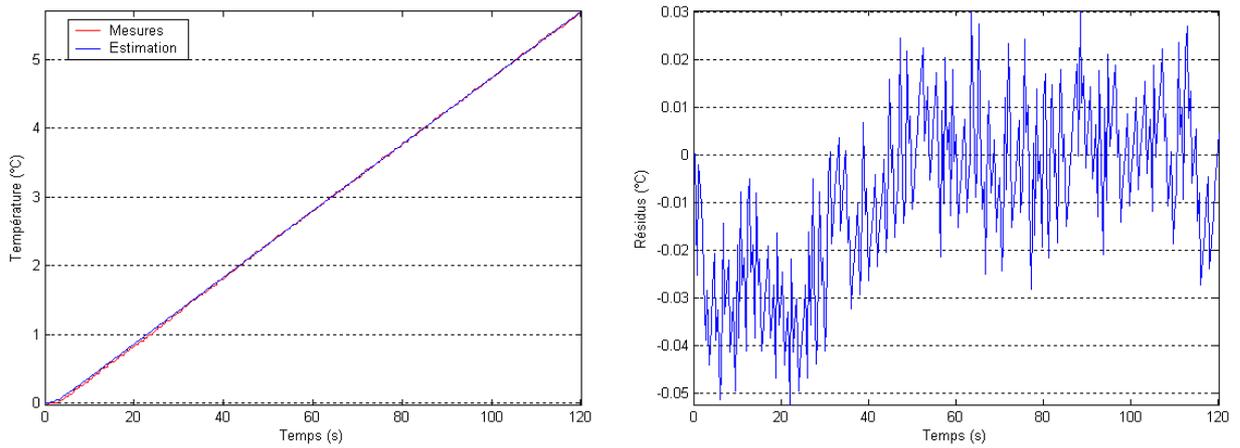


Figure 8.16c : Résultats des mesures effectuées sur l'aluminium AU4G. Mesures et simulations à droite et résidus à gauche.

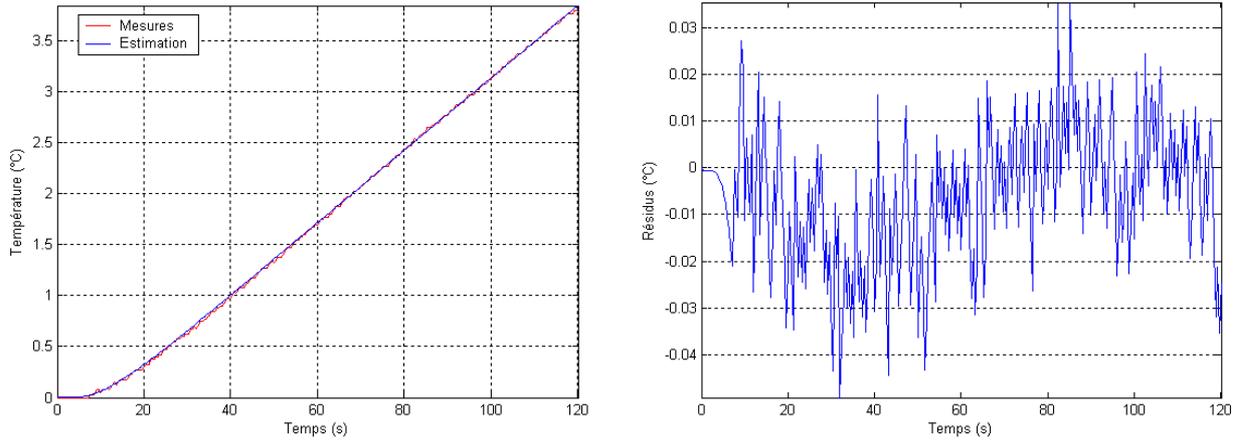


Figure 8.17a : Résultats des mesures effectuées sur le GNE10. Mesures et simulations à droite et résidus à gauche.

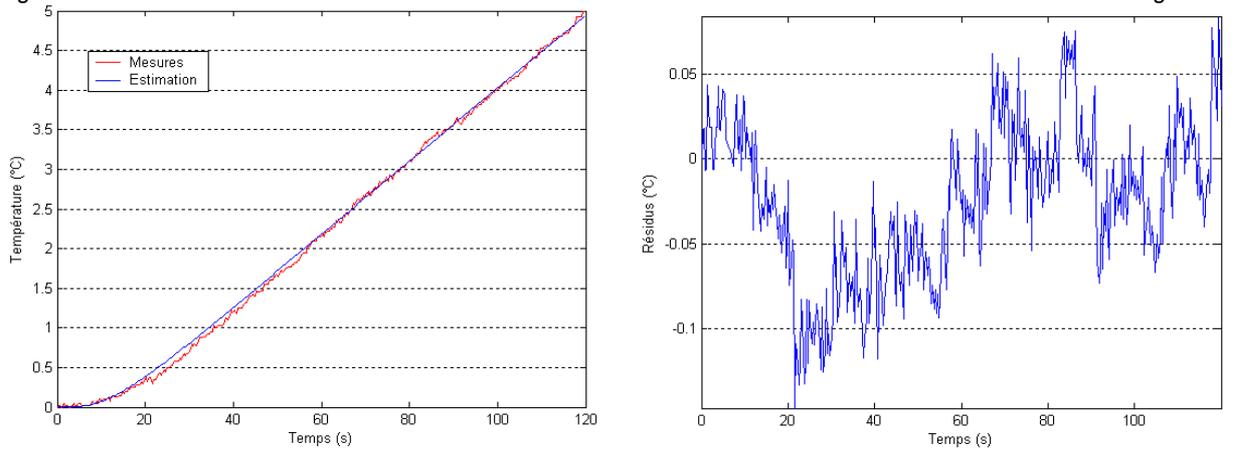


Figure 8.17b : Résultats des mesures effectuées sur le SFG05. Mesures et simulations à droite et résidus à gauche.

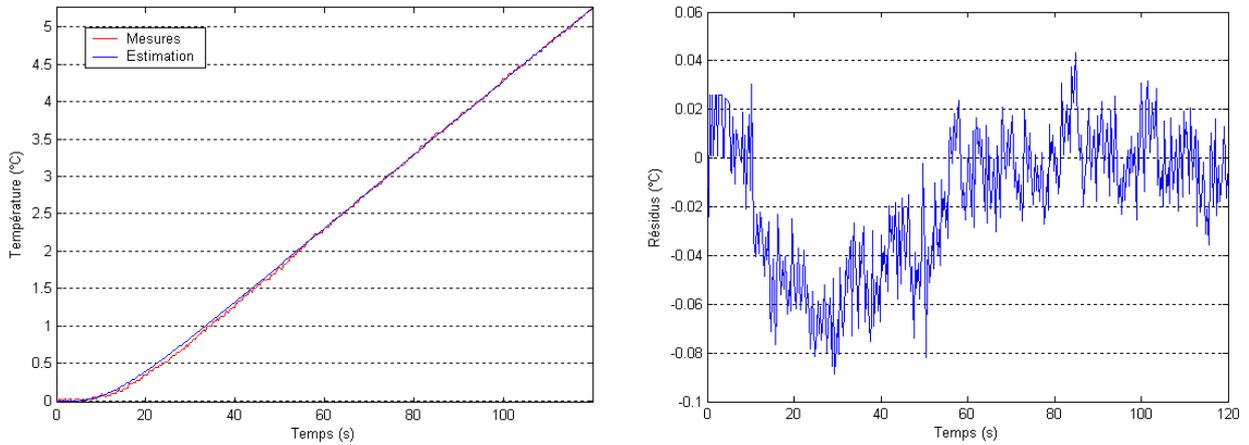


Figure 8.17c : Résultats des mesures effectuées sur le SFG25. Mesures et simulations à droite et résidus à gauche.

## 8.5. Conclusion

Nous avons proposé des stratégies simples et efficaces pour l'estimation des paramètres thermiques des matériaux à partir des mesures issues des dispositifs de type plan chaud et disque chaud.

Pour les dispositifs de type plan chaud, seules les observations aux temps longs de la température en face arrière de l'échantillon sont requises pour estimer la capacité thermique et la conductivité thermique dans la direction des transferts. La stratégie d'estimation proposée se déroule en deux étapes : dans la première on estime la capacité thermique et dans la deuxième la conductivité. Ces estimations comportent la résolution de deux problèmes simples de recherche de zéros. Même avec des qualités de mesure médiocres ( $\pm 0.5^\circ\text{C}$ ), le filtrage des données s'est avéré non nécessaire. Les tests de validation effectués ont mis en évidence la fiabilité et la justesse des estimations. On a pu constater également la robustesse de la méthode aux biais dans la connaissance des paramètres thermiques de la sonde (capacité et résistance thermiques) et aux bruits de mesure.

Pour les dispositifs de type disque chaud, l'estimation est bâtie sur les mesures, aux temps longs et aux temps courts, de la température en face arrière de l'échantillon. Les paramètres thermiques recherchés (capacité thermique et conductivités thermiques axiale et radiale) sont estimés par minimisation de la somme des écarts quadratiques entre simulations et mesures. Pour ce faire, nous utilisons l'algorithme de Gauss-Newton. L'initialisation des paramètres peut se faire simplement si l'on dispose également des mesures de la température en face avant. Des besoins de filtrage sont apparus pour des mesures de qualité moyenne ( $\pm 0.1^\circ\text{C}$ ) ou médiocre ( $\pm 0.5^\circ\text{C}$ ). Un filtre de type moyenne mobile a été proposé et testé avec succès ; de plus, une méthode simple pour choisir le paramètre du filtre a été proposée. Comme pour la méthode du plan chaud, les tests de validation effectués ont permis de constater la fiabilité et la justesse des estimations. La robustesse de la méthode d'estimation aux biais dans les paramètres thermiques de la sonde (capacité et résistance thermiques) et aux bruits de mesure est moins bonne que pour le cas du plan chaud. Elle reste toutefois plus qu'acceptable.

Les tests de caractérisation thermique réalisés sur mesures réelles (méthode plan chaud) ont confirmé les conclusions ci-dessus. Enfin, nous avons pu mettre en évidence les difficultés pour mesurer la température en face avant de l'échantillon.

# **Conclusion et perspectives**

## Conclusion et perspectives

Cette partie avait pour but de proposer des méthodes simples, robustes et appropriées aux spécificités des matériaux graphite/sel étudiés. Il s'agissait plus précisément de développer des méthodes permettant la caractérisation thermique complète de matériaux orthotropes à partir d'une seule expérimentation sur un seul échantillon.

Pour ce faire, nous nous sommes orientés vers le développement des dispositifs de type plan chaud et disque chaud, en constatant notamment l'élargissement des possibilités d'estimation offertes par la méthode du plan chaud en passant simplement de l'hypothèse du milieu semi-fini à celle du milieu fini. L'idée de rendre « fini » la méthode du disque chaud a alors émergée. La démarche de développement que nous avons adoptée était chronologiquement :

- De s'assurer de la faisabilité du passage en milieu fini en imaginant des dispositifs idéaux finis et d'en mesurer les avantages.
- De vérifier la conservation ou non de ces avantages lorsque les dispositifs imaginés évoluent vers les cas réels.
- D'établir des stratégies d'identification de paramètres aussi simples et robustes que possible.

La mise en œuvre de cette démarche s'est avérée très fructueuse dans de nombreux domaines. Tout d'abord l'étude des dispositifs idéaux a permis, aussi bien pour la méthode du plan chaud que celle du disque chaud, de mettre en place des protocoles de définition des conditions expérimentales « optimales » (dimensions des échantillons, taille de la sonde, intensité de l'excitation,...). On a pu également constater que ces protocoles restaient fiables dans le cas des dispositifs réels. Ces protocoles ont même pu être complétés de façon à dimensionner le dispositif pour rendre son évolution thermique aux points d'observation (centre face avant et centre face arrière) insensible aux pertes convectives latérales.

En ce qui concerne les dispositifs idéaux, les analyses de sensibilité des températures, et d'une manière plus originale des dérivées temporelles de ces températures, ont permis de déceler diverses possibilités d'initialisation et d'identification des paramètres du modèle. On a constaté malheureusement un rétrécissement du champ de ces possibilités pour les dispositifs réels. En effet, les sensibilités de la température en face avant aux paramètres de la sonde et à la résistance de contact sonde/échantillon se sont trouvées fortes et corrélées à celles des paramètres que l'on cherchait à identifier. Ce résultat pénalise donc fortement l'utilisation de l'information en face avant pour estimer les propriétés thermiques de l'échantillon. Toutefois, la température en face arrière de l'échantillon, sa dérivée temporelle et la différence de température entre les faces avant et arrière de l'échantillon se sont trouvées beaucoup moins sensibles à cette résistance de contact et aux paramètres de la sonde chauffante. Cela a permis d'élaborer des stratégies à la fois d'initialisation et d'estimation des propriétés thermiques de l'échantillon dans un dispositif qui s'approche de la réalité.

Les principaux enseignements à retenir de ce travail sont :

### Pour le plan chaud :

- L'impossibilité d'estimer la conductivité selon  $O\bar{r}$ .
- La possibilité d'estimer  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$  par deux stratégies différentes selon les informations disponibles aux temps longs.
- Une initialisation avant estimation des paramètres  $\rho c_p$  et  $\lambda_z$  par une simple régression linéaire de la température en face arrière de l'échantillon aux temps longs
- Un processus d'estimation basé uniquement et simplement sur un problème de recherche de zéros de fonction.

### Pour le disque chaud

- **La possibilité d'estimer simultanément  $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$  et  $\rho c_p$  en se basant uniquement sur la température aux temps longs et courts de la face arrière de l'échantillon.**
- Des valeurs des rapports  $R_o/R \approx 0.6$  et  $R/L = 2$  qui assurent une sensibilité des températures au centre des faces avant et arrière à tous les paramètres recherchés ( $\lambda_z$ ,  $\lambda_r$ ,  $\rho c_p$ ).
- Une sensibilité des estimations aux bruits de mesure, plus importante que pour les dispositifs de type plan chaud, nécessitant une étape de filtrage.
- Une initialisation des paramètres avant estimation par minimisation aux temps longs de l'écart quadratique entre les valeurs réelles et simulées des différences de température entre la face arrière et avant de l'échantillon.
- Un processus d'estimation basé sur une méthode de minimisation de l'écart quadratique de la température en face arrière de l'échantillon.

Par ailleurs, les tests de validation effectués ont à chaque fois révélé la robustesse de ces deux méthodes aux biais dans la connaissance des paramètres thermiques de la sonde (capacité et résistance thermiques) et aux bruits de mesure, ainsi que la fiabilité et la justesse des estimations. Ces résultats ont également pu être confirmés pour la méthode du plan chaud avec des tests de caractérisation thermique réalisés à partir de mesures réelles.

Compte tenu des possibilités d'estimation, le développement de la méthode du disque chaud « modifiée » a permis de répondre aux objectifs fixés. De plus, outre les avantages propres à la caractérisation des matériaux conducteurs orthotropes, elle est apparue beaucoup moins exigeante que la méthode du plan chaud en termes de taille d'échantillon, d'intensité d'excitation et de durée d'expérience.

## Conclusion et perspectives

Enfin, la démarche de modélisation des dispositifs réels a été établie de manière à anticiper son usage ultérieur (analyse de sensibilité et identification de paramètres) et à garantir la parcimonie (réduction des temps de calcul). Cette démarche a été basée sur la représentation modale d'un problème de géométrie simple et structurée de manière à réduire au maximum les calculs à réaliser lors des analyses de sensibilité paramétriques ou de l'identification de paramètres. Particulièrement, la parcimonie a été rendue possible grâce à la généralisation du calcul des valeurs propres des bases modales locales et ce, indépendamment des dimensions de l'échantillon.

Il conviendrait pour la suite, de tester expérimentalement la méthode du disque chaud et, de compléter les analyses de sensibilité réalisées sur ces dispositifs, en étudiant par exemple les incertitudes sur les dimensions de l'échantillon ou sur le placement des thermocouples. Il faudrait aussi s'attacher à parfaire l'étape de filtrage intervenant dans la stratégie d'estimation de la méthode du disque chaud, notamment aux temps longs.

Il nécessiterait également d'établir les limites d'application de ces dispositifs. Pour le disque chaud, il s'agirait notamment de vérifier les possibilités de caractérisation de matériaux présentant un facteur d'anisotropie très élevé.

Enfin, il serait également intéressant de transposer ce travail à d'autres méthodes utilisant des géométries de sonde différentes, telle que la méthode du ruban chaud dont les sondes chauffantes sont facilement disponibles sur le marché.

## Références bibliographiques

- [1] : Energy cascading combined with thermal energy storage in industry. 6th framework programme for research, European Commission.
- [2] : Setterwall F., Martin V., « Chemical reactions for transportation of thermal energy », 2nd Workshop of Annex 18 of IEA, Bordeaux, 2007.
- [3] : Kato Y., « possibility of chemical heat storage in thermal energy transportation market », first Workshop of Annex 18 of IEA, Tokyo, 2006.
- [4] : Hoshi A., Mills D. R., Bittar A., Saitoh T. S., « Screening of high melting point phase change materials (PCM) in solar thermal concentrating technology based on CLFR », *SOLAR ENERGY*, 79, 2005, p. 332-339.
- [5] : Bugaje M.I., « Enhancing the thermal response of latent heat storage systems », *Int J Energy Res*, Volume 21, 1997, p. 759-766.
- [6] : Douss N., Meunier F., «Effect of operating temperature on the coefficient of performance of active-carbon methanol systems », *Heat Recovery Systems*, 8(5), 1988, p. 383-392.
- [7] : Guillemint J.J., Meunier F., « Thermodynamic and economic optimization of solar powered solid adsorbent refrigerating units », *Int J Solar Energy*, Volume 7, 1989, p. 11-25.
- [8] : Himran S., Suwono A., « Characterization of alkanes and paraffin waxes for application of phase change energy storage medium », *Energy Sources*, Volume 16, 1994, p. 117-8.
- [9] : Hasnain S.M., « Review on sustainable thermal energy storage technologies, Part I: heat storage materials and techniques », *Energy Covers Mgmt*, Volume 11, 1988, p. 1127-1138.
- [10] : Shakhavov K.S., Tkachev AV., Khashiev OAM., « Use of paraffin compositions as thermal-storage substances in solar heat treatment of reinforced-concrete items », *Geliotekhnica*, 26, 1990, p. 69-72.
- [11] : Chow LC., Zhong JK., Beam JE., « Thermal conductivity enhancement for phase change storage media », *Int Comm Heat Mass Transfer*, Volume 23(1), 1996, p. 91-100.
- [12] : Velraj R., Seeniraj RV., Hafner B., Faber C., Schwarzer K., « Heat transfer enhancement in a latent heat storage system », *Solar Energy*, 65(3), 1999, p. 171-180.
- [13] : Erk HF., Dudukovi MP., « Phase-change heat regenerators: modeling and experimental studies », *AIChE J*, 42, 1996, p. 791-808.
- [14] : Chapotard C., Tondeur D., « Dynamics of latent heat storage in fixed beds, a non-linear equilibrium model, the analogy with chromatography », *Chem Eng Commun*, 24, 1983, p.183-204.
- [15] : Xiao M., Feng B., Gong K., « Thermal performance of a high conductive shape-stabilized thermal storage material », *Solar Energy Materials & Solar Cells*, 69, 2001, p. 293-296.
- [16] : Xiao M., Feng B., Gong K., « Preparation and performance of shape stabilized phase change thermal storage materials with high conductivity », *Energy Covers Mgmt*, 43, 2002, p.103-108.
- [17] : Py X., Olivès R., Mauran S., « Paraffin/porous-graphite-matrix composite as a high and constant power thermal storage material », *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 44, 2001, p. 2727-2737.

## Références bibliographiques

- [18] : Mesalhy O., Lafdi K., Elgafy A., « Carbon foam matrices saturated with PCM for thermal protection purposes ». *Carbon*, 44(10), 2006, p. 2080-2088.
- [19] : Mills A., Farid M., Selman J.R., Al-Hallaj S., « Thermal conductivity enhancement of phase change materials using a graphite matrix », *Applied Thermal Engineering*, Volume 26, Issues 14-15, 2006, p.1652-1661.
- [20] : Fukai J., Hamada Y., Morozumi Y., Miyatake O., « Effect of carbon-fiber brushes on conductive heat transfer in phase change materials », *Int J Heat Mass Transfer*, 45, 2002, p. 4781-92.
- [21] : Fujioka K., Hatanaka K., Hirata Y., « Composite reactant of calcium chloride combined with functional carbon materials for chemical heat pumps », *Applied Thermal Engineering*, 2006.
- [22] : Elgafy A., Lafdi K., « Effect of carbon nanofiber additives on thermal behaviour of phase change materials », *Carbon*, 43, 2005, p.3067-3074.
- [23] : Fukai J., Kanou M., Kodama Y., Miyatake O., « Thermal conductivity enhancement of energy storage media using carbon fibers », *Energy Covers Mgmt*, 41, 2000, p. 1543-56.
- [24] : Frusteri F., Leonardi V., Vasta S., Restuccia G., « Thermal conductivity measurement of a PCM based storage system containing carbon fibers », *Appl. Therm. Eng*; 25, 2005, p.1623-1633.
- [25] : Hérold C., Lagrange P., « Composés d'intercalation du graphite : des binaires aux ternaires », *C. R. Chimie* 6, 2003, p. 457-465.
- [26] : Kinoshita K., « CARBON: Electrochemical and Physicochemical Properties », John Wiley & Sons, New York, 1988, p. 201–219.
- [27] : Inagaki M., « Applications of graphite intercalation compounds », *J. Mater. Res.*, Vol. 4, No. 6, 1989, p. 1560-1568.
- [28] : Anderson S.H., Chung D.D.L., « Exfoliation of intercalated graphite », *Carbon*, Vol. 22, No. 3, 1984, p. 253-263.
- [29] : Chung D.D.L., « Review :Exfoliation of graphite », *J. Mater. Science*, Vol. 22, 1987, p. 4190-4198.
- [30] : Celzard A., Marêché J.F., Furdin G., « Modelling of exfoliated graphite », *Progress in Materials Science*, 50, 2005, p. 93-179.
- [31] : Yoshida A., Hishiyama Y., Inagaki M., « Exfoliated graphite from various intercalation compounds », *Carbon*, Vol. 29, No. 8, 1991, p. 1227-1231.
- [32] : Kang F., Zheng Y-P., Wang H-N., Nishi Y., Inagaki M., « Effect of preparation conditions on the characteristics of exfoliated graphite », *Carbon*, Vol. 40, 2002, p. 1575-1581.
- [33] : Berger D., Maire J., « Propriétés physiques du Graphite Expandé Recomprimé », *Materials Sciences an Engineering*, 31, 1977, p. 335-339.
- [34] : Han J.H., Cho K.W., Lee K.-H., Kim H., « Porous matrice graphite for chemical heat pumps », *Carbon*, Vol. 36, No. 12, 1998, p. 1801-1810.
- [35] : Olivès R., Mauran S., « A highly conductive porous medium for solid-gas reactions : Effect of the dispersed phase on the thermal tortuosity », *Transport in Porous Media*, 43, 2001, p. 377-394.
- [36] : Wang K., Wu J.Y., Wang R.Z., Wang L.W., « Effective thermal conductivity of expanded graphite-CaCl<sub>2</sub> composite adsorbent for chemical adsorption chillers », *Energy Conversion and Management*, 47, 2006, p. 1902-1912.

- [37] : Lopez J., « Nouveaux matériaux graphite/sel pour le stockage d'énergie à haute température. Etude des propriétés de changement de phase », Thèse de Doctorat de l'Université de Bordeaux I, 2007.
- [38] : KAMIMOTO M., « Thermodynamic properties of 50 mole %  $\text{NaNO}_3$  – 50%  $\text{KNO}_3$  », *Thermochimica Acta*, 49, 1981, p.319-331
- [39] : KRAMER C. M., MUNIR Z. A., VOLPONI J. V., « Differential scanning calorimetry of sodium and potassium nitrates and nitrites », *Thermochimica Acta*, Volume 55, Issue 1, 1982, p. 11-17.
- [40] : Pincemin S., « Elaborations et caractérisations de matériaux composites à hautes performances énergétiques pour l'intégration d'un stockage thermique dans les centrales électrosolaires. », Thèse de Doctorat, PROMES, Perpignan, 2007.
- [41] : Carling R.W., Kramer C.M., Bradshaw R.W., Nissen D.A., Goods S.H., Mar R.W., Munford J.W., Karnowsky M.M., Biefeld R.N., Norem N.J., « Molten nitrate salt technology development status report », Sandia National Laboratories Report SAND80-8052, 1981.
- [42] : HTP-STOCK, Rapport final.
- [43] : Celzard A., Schneider S., Marêché J.F., « Densification of expanded graphite », *Carbon*, 40, No. 3, 2002, p. 2185-2191.
- [44] : Bonnissel M., Luo L., Tondeur D., « Compacted exfoliated natural graphite as a heat conduction medium », *Carbon*, 40, 2001, p. 2151-2161.
- [45] : Mauran S., L'Haridon F., « Compression uniaxiale d'un mélange binaire poreux très déformable dans un moule cylindrique », *Powder Technology*, 83, 1995, p. 111-126.
- [46] : Janz G.J., « Molten Salts Handbook », Academic Press (1967).
- [47] : <http://www.timcal.com/>.
- [48] : Dowell M.B., Howard R.A., « Tensile and compressive properties of flexible graphite foils », *Carbon*, Vol. 24, No. 3, 1986, p. 311-323.
- [49] : Torquato S., « Random heterogeneous materials. Microstructure and macroscopic properties », Springer-Verlag, New York, 2002.
- [50] : Sahimi M., « Applications of percolation theory », Taylor & Frances, Bristol, 1994.
- [51] : Sahimi M., « Flow phenomena in rocks: from continuum models to fractals, percolation, cellular automata, and simulated annealing », *Rev. Mod. Phys.*, 65(4):1393-534, 1993.
- [52] : Sahimi M., « Non-linear and non-local transport processes in heterogeneous media: from long-range correlated percolation to fracture and materials breakdown », *Phy. Rep*, 306(4-6): 213-395, 1998.
- [53] : Kirpatrick S., « Percolation and conduction », *Rev. Mod. Phys.*, 45: 574-88, 1973.
- [54] : Ruschau GR., Newnham RE., « Critical volume fractions in conductive composites », *J. Compos. Mater.* 26(18): 2727-35, 1992.
- [55] : Celzard A., McRae E., Deleuze C., Dufort M., Furdin G., Marêché J. F., « Critical concentration in percolating systems containing high-aspect-ratio », *Phys. Rev. B*, 53(10): 6209-14, 1996
- [56] : Clerc J.P., Girand G., Langier J.M., Luck J.M., « The electrical conductivity of binary disordered systems, percolation clusters, fractals and related models », *Adv. Phys.* 39, 1990, p. 191-303.

## Références bibliographiques

- [57] : Ce-Wen N., « Physics of inhomogeneous inorganic materials », *Prog. Mater. Sci.*, 37, 1993, pp. 1-116.
- [58] : McLachlan D.S., Blaszkiewicz M., Newnham R. E., « Electrical resistivity of composites », *Journal of Physics C: Solid state physics*, 73 (8), 1990, p. 2187-2203.
- [59] : Meredith RE., Tobias CW, « Conduction in heterogeneous systems »; pp. 15-47 in *Advances in Electrochemistry and Electrochemical Engineering*, Vol. 2, Ed. by C.W. Tobias, Interscience, New York, 1962.
- [60] : Landauer R., « Electrical transport and optical properties of inhomogeneous media », AIP Conference Proceedings, No. 40, 1978, p. 2-43.
- [61] : McLachlan D.S., « Equations for the conductivity of macroscopic mixtures », *Journal of Physics C: Solid state physics*, 19, 1986, p. 1339-1354.
- [62] : McLachlan D.S., « An equation for the conductivity of binary mixtures with anisotropic grain structures », *Journal of Physics C: Solid state physics*, 20, 1987, p. 865-877.
- [63] : Wu J., MacLachlan D.S., « Scaling behavior of the complex conductivity of hraphite-boron nitride percolation systems », *Physixal Review B*, 58 (22), 1998, p.14880 – 87.
- [64] : Wu J., MacLachlan D.S., « Percolation exponents and thresholds in two nearly ideal anisotropic continuum systems », *Physica A*, 241, 1997, p.360-66.
- [65] : MacLachlan D.S., « Analytic scaling functions for percolative meatl-insulator phase transitions fitted to  $Al_xGe_{1-x}$  data », *Physica B*, 254, 1998, p.249-55.
- [66] : Chiteme C., MacLachlan D.S., « Measurements of universal and non-universal percolation exponents in macroscopically similar systems », *Physica B*, 279, 2000, p.69-71.
- [67] : MacLachlan D.S., Cai K., Chiteme C., Heiss W.D., « An analysis of dispersion measurements in percolative metal-insulator systems using analytic scaling functions », *Physica B*, 279, 2000, p.66-68.
- [68] : MacLachlan D.S., Cai K., Sauti G., « AC and dc conductivity-based microstructural characterization », *Int. J. of Refractory Metals & Hard Materials*, 19, 2001, p.437-445.
- [69] : MacLachlan D.S., C. Chiteme, W.D. Heiss, J. Wu, « Fitting the DC conductivity and first order AC conductivity results for continuum percolation media, using percolation theory and a single phenomenological equation », *Physica B*, 338, 2003, p.261-265.
- [70] : MacLachlan D.S., Chiteme C., Heiss W.D., Wu J., « The correct modelling of the second order terms of the complex AC conductivity results fro continuum percolation media, using a single phenomenological equation », *Physica B*, 338, 2003, p.256-260.
- [71] : Carmona F., Canet R., Delhaes P., « Piezoresistivity of heterogeneous solids », *Journal of Applied Physics*, Vol. 61, No. 7, 1987, p. 2550-2557.
- [72] : Laurent M., Vuillermoz P.L., « Conductivité thermique des solides», *Technique de l'Ingénieur*, K 420, 1993.
- [73] : Morisson V., Rady M., Palomo E., Arquis E., « Thermal energy storage systems for electricity production using solar energy direct steam generation technology The analysis of the electrical conductivity of graphite powders during compaction », *Chemical Engineering and Processing*, en cours.

- [74] : Rady M., Morisson V., Palomo E., Arquis E., « Modélisation et simulation d'une unité de stockage de MCP (DISTOR) », Rapport interne, Laboratoire TREFLE, 2004.
- [75] : HLADIK J., « Métrologie des propriétés thermophysiques des matériaux », éditions Masson, 1990.
- [76] : Dégiovanni A., « Diffusivité et méthode flash », *Revue Générale de Thermique*, 185, 1977, p. 420-441.
- [77] : Donaldson A.b., Taylor R.E., « Thermal diffusivity measurement by a radial heat flow method », *J. Appl. Phys.*, 46 (10), 1975, p. 4584-4589.
- [78] : Welch C.S., Heath D. M., Winfree W. P. « Remote measurement of in-plane diffusivity components in plates », *J. Appl. Phys.*, 61 (3), 1987, p. 895-898.
- [79] : Salazar A., Sanchez-Lavega A., Ocariz A., Guitonny J., Pandey G.C., Fournier D., BoccaraA.C., « Thermal diffusivity of anisotropic materials by photothermal methods », *J. Appl. Phys.*, 79 (8), 1996, p. 3984-3993.
- [80] : Degiovanni A., Batsale J.C., Maillet D., « Mesure de la diffusivité longitudinale de matériaux anisotropes. Panorama des techniques développées au LEMTA », *Rev. Gén. Therm.*, 35, 1996, p. 141-147.
- [81] : Demange D., Beauchike P., Bejet M., Casulleras R., « Mesure simultanée de la diffusivité thermique selon les deux directions principales d'un matériau », *Rev. Gén. Therm.*, 36, 1997, p. 755-770.
- [82] : Krapez J.C., Spagnolo L., Frieß M., Maier H.P., Neuer G., « Measurement of in-plane diffusivity in non-homogeneous slabs by applying flash thermography », *International Journal of Thermal Sciences*, 43, 2004, p. 967-977.
- [83] : Boudenne A., Ibos L., Gehon E., Candau Y., « Asimultaneous characterization of thermal conductivity and diffusivity of polymer materials by a periodic method », *Journal of Physics D: Applied Physics*, 37, 2004, p. 132-139.
- [84] : Zhang X., Dégiovanni A., Maillet D., « Hot-wire measurement of thermal conductivity of solids : a new approach », *High Temperatures. High Pressures*, vol. 25, 1993, p. 577-584.
- [85] : Zhang X. X., Degiovanni A., « Mesure de l'effusivité thermique de matériaux solides et homogènes par une méthode de "sonde" plane », *Journal de Physique III France* 3, 1993, p.1243-1265.
- [86] : Jannot Y., Acem Z., Kanmogne A., « Transient hot plate method with two temperature measurements for thermal characterization of metals », *Measurement Science and Technology*, 17, 2006, p. 69-74.
- [87] : Fudym O., Battaglia J.L., Batsale J.C., « Measurement of thermophysical properties in semi-infinite media by random heating and fractional model identification », *Review of Scientific Instruments*, 76, 2005.
- [88] : Gustafsson S.E., « Transient plane source techniques for thermal conductivity and thermal diffusivity measurements of solid materials », *Rev. Sci. Instrum.*, vol.62, 3, 1991, pp.797-804.
- [89] : Vernotte P., *C.R. Acad. Paris*, 563, 1937.

## Références bibliographiques

- [90] : Incropera P., DeWitt P. D., « Fundamentals of heat and mass transfer », fourth edition, J. Wiley & Sons, New York, 1996.
- [91] : Jannot Y., Acem Z., « A quadrupolar complete model of the hot disc », *Measurement Science and Technology*, 18, 2007, p. 1-6.
- [92] : Maillot D., André A., Batsale J.-C., Degiovanni A., Moyne C., « Thermal quadrupoles », John Wiley & Sons Ltd, 2000.
- [93] : Chao B. T., « A note on conduction of heat in anisotropic solids », *Appl. Sci. Res.*, A12, 1963, p. 134-138.
- [94] : Ozisik M.N., « Heat Conduction – Second Edition », J. Wiley & Sons, New York, 1993.
- [95] : Mounanga P., Bastian G., Bron G., Coué R., « Rapid determination of the thermophysical properties of various materials. Method of the hot plane film », *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* **26**, 2004, p.65-72.
- [96] : Abramowitz M. & Stegun I. E. (ed), « Handbook of Mathematical Functions with formulas, graphs, and mathematical tables », U.S. Department of Commerce, National Bureau of Standards, Applied Mathematics Series 55, 1964.
- [97] : Ozisik M.N., « Boundary Value Problems of Heat Conduction », Dover Publications , New York, 1968.
- [98] : Mikailov M. D., Özişik M. N., « Unified analysis and solutions of heat and mass diffusion », Dover Publications, New York, 1984
- [99] : Lefèbvre G. « La méthode modale en thermique », Ellipses Edition, Paris, 2007.
- [100] : Palomo Del Barrio E., « Résolution de problèmes thermiques de grande dimension. Méthodes de réduction », HDR, Université Paris XII-Val de Marne, 2000.
- [101] : El Khoury K., « Formulation modale de problèmes de diffusion thermique avec transport », Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris, 1989.
- [102] : El Khoury K., Neveu A. « Analyse modale des systèmes thermiques en présence de transferts non-réciproques », *Int. J. Heat and Mass Trans.*, 32 (2), 1989, p.213-226.
- [103] : Ölçer N. Y., « On the theory of conductive heat transfer in finite regions », *Int. J. Heat and Mass Transfer*, 7, 1964, p.307-314.
- [104] : Marshall S. A., « An approximate method for reducing the order of a linear system », *Control*, **10**, 1966, p.642-643.
- [105] : Blanc-Sommereux I., « Étude du couplage dynamique de composants du bâtiment par synthèse modale », Thèse de Doctorat, École des Mines de Paris, 1991.
- [106] : Lefèbvre G., Palomo E., Ait-Yahia A., « Sub structured modelling of linear thermal systems: the modal synthesis », *Numerical Heat Transfer Part B - Fundamentals*, Vol. 39, N°3, 2001, p.303-324.
- [107] : Flament B., « Synthèse modale de systèmes thermiques », Thèse de Doctorat, École des Mines de Paris, 1993.
- [108] : Bastian G., *Rev. Phys. Appl.*, 22, 431 (1987).

## **Annexe**

## Annexe A

### A.1. Éléments propres d'un problème de conduction orthotrope

Nous considérons les problèmes aux valeurs propres :

$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial V_{mp}(r,z)}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 V_{mp}(r,z)}{\partial z^2} = -\gamma_{mp}^2 V_{mp}(r,z) \quad 0 < z < L \ \& \ 0 < r < R \quad (\text{a1})$	
<p>avec :</p> $\frac{\partial V_{mp}(r,z)}{\partial r} = 0 \quad r=0 \quad \forall z$ $\frac{\partial V_{mp}(r,z)}{\partial r} + H V_{mp}(r,z) = 0 \quad r=R \quad \forall z$	$-\frac{\partial V_{mp}(r,z)}{\partial z} + H_s V_{mp}(r,z) = 0 \quad \forall r \quad z=0$ $\frac{\partial V_{mp}(r,z)}{\partial z} + H_n V_{mp}(r,z) = 0 \quad \forall r \quad z=L$

et :

$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial W_{mp}(r,z)}{\partial r} \right) + \varepsilon^2 \frac{\partial^2 W_{mp}(r,z)}{\partial z^2} = -\zeta_{mp}^2 W_{mp}(r,z) \quad 0 < z < L \ \& \ 0 < r < R \quad (\text{a2})$	
<p>avec :</p> $\frac{\partial W_{mp}(r,z)}{\partial r} = 0 \quad r=0 \quad \forall z$ $\frac{\partial W_{mp}(r,z)}{\partial r} + H W_{mp}(r,z) = 0 \quad r=R \quad \forall z$	$-\frac{\partial W_{mp}(r,z)}{\partial z} + H_s W_{mp}(r,z) = 0 \quad \forall r \quad z=0$ $\frac{\partial W_{mp}(r,z)}{\partial z} + H_n W_{mp}(r,z) = 0 \quad \forall r \quad z=L$

avec mêmes valeurs de  $H$ ,  $H_n$  et  $H_s$ . La solution du problème (a1) s'écrit :

$$V_{mp}(r,z) = \psi(\beta_m, r) \phi(\eta_p, z) \quad \text{avec} \quad \gamma_{mp}^2 = \beta_m^2 + \eta_p^2$$

En la réintroduisant dans les équations (a1), on trouve :

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left( r \frac{d\psi(\beta_m, r)}{dr} \right) = -\beta_m^2 \psi(\beta_m, r) \quad \frac{d^2 \phi(\eta_p, z)}{dz^2} = -\eta_p^2 \phi(\eta_p, z) \quad (\text{a3})$$

Nous allons maintenant montrer que :

$$\forall m, p \quad W_{mp}(r,z) = V_{mp}(r,z) \quad \text{avec} \quad \zeta_{mp}^2 = \beta_m^2 + \varepsilon^2 \eta_p^2 \quad (\text{a4})$$

Pour ce faire, nous introduisons cette solution dans l'équation (a2). On obtient :

$$(\varepsilon^2 - 1) \frac{\partial^2 V_{mp}(r,z)}{\partial z^2} = -(\varepsilon^2 - 1) \eta_p^2 V_{mp}(r,z) \Rightarrow \frac{d^2 \phi(\eta_p, z)}{dz^2} = -\eta_p^2 \phi(\eta_p, z)$$

Les équations (a4) vérifient donc le problème aux valeurs propres (a2).

### A.2. Solution des équations définissant le régime pseudo – permanent – Méthode de la transformation intégrale

On considère les problèmes (7.25) et (7.17) définissant respectivement le régime pseudo - permanent et les valeurs et fonctions propres associées. On suppose que les fonctions propres  $V_{mp}(r,z) = \psi(\beta_m, r) \phi(\eta_p, z)$  ont été normalisées. Pour simplifier l'écriture, on note :

$$\nabla^2 \equiv \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial \bullet}{\partial r} \right) + \varepsilon^2 \frac{\partial^2 \bullet}{\partial z^2}; \quad \frac{\partial \bullet}{\partial n_i} \equiv \frac{\partial \bullet}{\partial z}, -\frac{\partial \bullet}{\partial z}$$

$$\int_{\Omega} \bullet d\Omega \equiv \int_{r=0}^R \int_{z=0}^L \bullet r dr dz; \quad \int_{\partial\Omega_i} \bullet ds_i \equiv \int_{r=0}^R \bullet r dr$$

On considère la transformation intégrale :

$$Z_{mp}(t) = \int_{\Omega} V_{mp}(r, z) T^s(r, z, t) d\Omega \quad (\text{a5})$$

et son inverse :

$$T^s(r, z, t) = \sum_{m,p=1}^{\infty} V_{mp}(r, z) Z_{mp}(t) = \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \psi(\beta_m, r) \phi(\eta_p, z) Z_{mp}(t) \quad (\text{a6})$$

On applique la transformation (a5) aux équations (7.25). Compte tenu du théorème de Green, on obtient :

$$\int_{\Omega} V_{mp} \nabla^2 T^s d\Omega = \int_{\Omega} T^s \nabla^2 V_{mp} d\Omega + \sum_{i=n,s} \int_{\partial\Omega_i} \left[ V_{mp} \frac{\partial T^s}{\partial n_i} - T^s \frac{\partial V_{mp}}{\partial n_i} \right] ds_i = 0 \quad (\text{a7})$$

En tenant compte de l'orthonormalité de la base des fonctions propres, on peut montrer à partir des équations (7.25) et (7.17) que (cf. [94]) :

$$\int_{\Omega} T^s \nabla^2 V_{mp} d\Omega = -\gamma_{mp}^2 Z_{mp}(t) \quad \text{et} \quad \left[ V_{mp} \frac{\partial T^s}{\partial n_i} - T^s \frac{\partial V_{mp}}{\partial n_i} \right] = V_{mp} f_i$$

En reportant ces expressions dans l'équation (a7), on obtient :

$$-\gamma_{mp}^2 Z_{mp}(t) + \sum_{i=n,s} \int_{\partial\Omega_i} V_{mp}(r, z) f_i(r, t) ds_i = 0$$

ou encore :

$$Z_{mp}(t) = \frac{\phi(\eta_p, 0)}{\gamma_{mp}^2} \int_{r=0}^R r \psi(\beta_m, r) f_s(r, t) dr + \frac{\phi(\eta_p, L)}{\gamma_{mp}^2} \int_{r=0}^R r \psi(\beta_m, r) f_n(r, t) dr \quad (\text{a8})$$

En reportant cette expression dans la formule (a6) d'inversion, on retrouve l'équation (7.26).

### A.3. Solution des équations définissant le régime pseudo – permanent – Méthode de séparation de variables

La solution du problème (7.25) définissant le régime pseudo - statique peut s'exprimer comme :  $T^s(r, z, t) = T_1(r, z, t) + T_2(r, z, t)$ , où  $T_1(r, z, t)$  et  $T_2(r, z, t)$  sont les solutions des problèmes qui permettent d'annuler  $f_n(r, t)$  et  $f_s(r, t)$ , respectivement, dans les équations (7.25).

La méthode de séparation de variables nous autorise à écrire :

$$T_1(r, z, t) = \sum_{m=1 \dots \infty} C_m(t) \psi(\beta_m, r) \phi_1(\beta_m, z) \quad (\text{a9})$$

En reportant cette expression dans les équations (7.25) avec  $f_n(r, t) = 0$  et en choisissant convenablement le signe de la variable de séparation, on obtient :

$$\begin{cases} \frac{d^2\psi_m}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{d\psi_m}{dr} + \beta_m^2 \psi_m = 0 & 0 \leq r < R \\ \frac{d\psi_m}{dr} + H\psi_m = 0 & r = R \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} \frac{d^2\phi_m}{dz^2} + \left(\frac{\beta_m}{\varepsilon}\right)^2 \phi_m = 0 & 0 \leq z < L \\ \frac{d\phi_m}{dz} + H_n \phi_m = 0 & z = L \end{cases} \quad (\text{a10})$$

où on a noté :  $\psi_m \equiv \psi(\beta_m, r)$  et  $\phi_m \equiv \phi_1(\beta_m, z)$ . La solution du problème aux valeurs et fonctions propres en haut à gauche est  $\psi(\beta_m, r) = J_0(\beta_m r)$ ,  $\beta_m$  étant les racines positives de l'équation  $-\beta_m J_1(\beta_m R) + H J_0(\beta_m R) = 0$ . Nous notons  $N(\beta_m)$  la norme des fonctions propres. Quant à la solution du problème (a10) à droite, on peut aisément vérifier qu'elle est :

$$\phi_1(\beta_m, z) = \cosh\left[\left(\frac{\beta_m}{\varepsilon}\right)(L-z)\right] + H_n \left(\frac{\beta_m}{\varepsilon}\right)^{-1} \sinh\left[\left(\frac{\beta_m}{\varepsilon}\right)(L-z)\right] \quad (\text{a11})$$

En reportant l'expression (a9) dans l'équation des conditions aux limites sur  $z = 0$ , on obtient :

$$f_s(r, t) = \sum_{m=1}^{\infty} A_m(t) \left[ -\frac{d\phi_1(\beta_m, z)}{dz} \Big|_{z=0} + H_s \phi_1(\beta_m, 0) \right] \psi(\beta_m, r) \quad (\text{a12})$$

En appliquant la transformation intégrale  $\int_{r=0}^R \bullet \psi_m(r) r dr$  sur (a12) et tenant compte de l'orthogonalité des fonctions  $\psi(\beta_m, r)$ , on obtient :

$$C_m(t) = \left[ -\frac{d\phi_1(\beta_m, z)}{dz} \Big|_{z=0} + H_s \phi_1(\beta_m, 0) \right]^{-1} \frac{1}{N(\beta_m)} \int_{r=0}^R r \psi(\beta_m, r) f_s(r, t) dr \quad (\text{a13})$$

ou encore (voir a11) :

$$C_m(t) = \left[ \left\{ \left(\frac{\beta_m}{\varepsilon}\right) + \left(\frac{\beta_m}{\varepsilon}\right)^{-1} H_s H_n \right\} \sinh\left(\frac{\beta_m L}{\varepsilon}\right) + (H_s + H_n) \cosh\left(\frac{\beta_m L}{\varepsilon}\right) \right]^{-1} \frac{1}{N(\beta_m)} \int_{r=0}^R r \psi(\beta_m, r) f_s(r, t) dr$$

En travaillant avec les fonctions propres normalisées,  $\psi(\beta_m, r) \leftarrow \psi(\beta_m, r) / \sqrt{N(\beta_m)}$ , on maintient l'équation (a9) mais on écrit :

$$C_m(t) = \left[ \left\{ \left(\frac{\beta_m}{\varepsilon}\right) + \left(\frac{\beta_m}{\varepsilon}\right)^{-1} H_s H_n \right\} \sinh\left(\frac{\beta_m L}{\varepsilon}\right) + (H_s + H_n) \cosh\left(\frac{\beta_m L}{\varepsilon}\right) \right]^{-1} \int_{r=0}^R r \psi(\beta_m, r) f_s(r, t) dr \quad (\text{a15})$$

De façon analogue, on peut montrer que :

$$T_2(r, z, t) = \sum_{m=1 \dots \infty} C_m(t) \psi(\beta_m, r) \phi_2(\beta_m, z)$$

avec :

$$\phi_2(\beta_m, z) = \cosh\left[\left(\frac{\beta_m}{\varepsilon}\right)z\right] + H_s \left(\frac{\beta_m}{\varepsilon}\right)^{-1} \sinh\left[\left(\frac{\beta_m}{\varepsilon}\right)z\right]$$

et  $C_m(t)$  donné par l'équation (a15).

#### A.4. Obtention des équation d'état modaux

En remplaçant  $T^d(r, z, t)$  dans l'équation (7.33) par l'expression (7.34), on obtient :

$$\sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \psi_m(r) \phi_p(z) \frac{dX_{mp}(t)}{dt} = \alpha_r \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \left\{ \phi_p(z) \frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left( r \frac{d\psi_m(r)}{dr} \right) + \varepsilon^2 \psi_m(r) \frac{d^2 \phi_p(z)}{dz^2} \right\} X_{mp}(t) - \frac{\partial T^s(r, z, t)}{\partial t}$$

où on a noté :  $\psi_m(r) \equiv \psi(\beta_m, r)$  et  $\phi_m(z) \equiv \phi_1(\beta_m, r)$ . Compte tenu de l'équation (7.17), définissant le problème aux valeurs et fonctions propres associées à (7.25), l'expression ci-dessus devient :

$$\sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \psi_m(r) \phi_p(z) \frac{dX_{mp}(t)}{dt} = - \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \alpha_r \gamma_{mp}^2 \psi_m(r) \phi_p(z) X_{mp}(t) - \frac{\partial T^s(r, z, t)}{\partial t} \quad (\text{a16})$$

On multiplie l'équation (a16) par  $r\psi_k(r)$  et on intègre le résultat sur  $0 \leq r \leq R$ . Compte tenu de (7.24), il résulte :

$$\sum_{p=1}^{\infty} \phi_p(z) \frac{dX_{mp}(t)}{dt} = - \sum_{p=1}^{\infty} \alpha_r \gamma_{mp}^2 \phi_p(z) X_{mp}(t) - \int_{r=0}^R r \psi_k(r) \frac{\partial T^s(r, z, t)}{\partial t} dr \quad (\text{a17})$$

De même, on multiplie (a17) par  $\phi_j(z)$  et on intègre le résultat sur  $0 \leq z \leq L$ . Compte tenu de (7.24), on obtient :

$$\frac{dX_{mp}(t)}{dt} = - \alpha_r \gamma_{mp}^2 X_{mp}(t) - \int_{z=0}^L \int_{r=0}^R r \psi_k(r) \phi_j(z) \frac{\partial T^s(r, z, t)}{\partial t} dr dz \quad (\text{a18})$$

En reportant l'équation (7.26) dans l'expression ci-dessus et en tenant compte de l'orthonormalité de la base modale (eq. (7.24)), il résulte :

$$\frac{dX_{mp}(t)}{dt} = - \alpha_r \gamma_{mp}^2 X_{mp}(t) - \frac{d \bar{f}_{mp}(t)}{dt}$$

---

## **Annexe B**

---

# Transient hot plate method with two temperature measurements for thermal characterization of metals

Yves Jannot<sup>1</sup>, Zoubir Acem<sup>1</sup> and Abraham Kanmogne<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire TREFLE, Esplanade des Arts et Métiers, 33405 Talence Cedex, France

<sup>2</sup> Laboratoire d'Energétique, Ecole Nationale Supérieure Polytechnique, BP8390 Yaoundé, Cameroon

E-mail: [yves.jannot@bordeaux.ensam.fr](mailto:yves.jannot@bordeaux.ensam.fr)

Received 29 March 2005, in final form 29 September 2005

Published 30 November 2005

Online at [stacks.iop.org/MST/17/69](http://stacks.iop.org/MST/17/69)

## Abstract

This paper presents a study of the transient hot plate method with simultaneous measurements of front (heated) and rear face temperatures. In contrast to the classical device, a single sample of the material to be thermally characterized is set in contact with a planar heating element and inserted between two pieces of insulating material. The purpose was to simultaneously estimate thermal effusivity and conductivity of metals in a limited time  $t_2$  ( $< 90$  s) using a low-cost device. Heat transfer has been modelled with a quadrupole formalism to simulate the front and rear face temperatures  $T_0(t)$  and  $T_2(t)$ . Simulation is used to fix the minimal thickness of the sample so that the front face temperature remains independent of thermal conductivity during a time  $t_1 > 30$  s. The thermal effusivity is estimated between 0 and  $t_1$  by minimization of the quadratic errors between the experimental curve and the simulated curve  $T_0(t)$ . The thermal conductivity is estimated between 0 and  $t_2$  by minimization of the quadratic errors between the experimental curve and the simulated curve  $T_2(t)$ . To validate the model and the estimation process, experimental tests were realized on four samples of metals with conductivities varying from 6 to 140 W m<sup>-1</sup> °C<sup>-1</sup> and having typical area 44.5 × 44.5 mm<sup>2</sup> and thickness varying from 16.7 to 80 mm.

**Keywords:** transient hot plate, rear face, front face, thermal quadrupoles, effusivity, conductivity, parameter estimation

---

## Nomenclature

$a$	thermal diffusivity (m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> )	$R_c$	thermal contact resistance (°C W <sup>-1</sup> )
$c$	specific heat of the heating element (J kg <sup>-1</sup> °C <sup>-1</sup> )	$S$	heating element area (m <sup>2</sup> )
$e$	sample thickness (m)	$T_0$	temperature increase of the front (heated) face (°C)
$E$	thermal effusivity of the material (J m <sup>-2</sup> °C <sup>-1</sup> s <sup>-1/2</sup> )	$T_2$	temperature increase of the rear face (°C)
$E_i$	thermal effusivity of the insulating material (J m <sup>-2</sup> °C <sup>-1</sup> s <sup>-1/2</sup> )	$V_j$	coefficients of the Stehfest algorithm
$h$	convective heat transfer coefficient (W m <sup>-2</sup> °C <sup>-1</sup> )	$\theta_0$	Laplace transform of $T_0$
$m$	mass of the heating element (kg)	$\theta_2$	Laplace transform of $T_2$
$p$	Laplace parameter	$\varphi_0$	heat flux dissipated in the heating element (W)
$p_e$	sample perimeter (m)	$\Phi$	Laplace transform of the heat flux
		$\lambda$	thermal conductivity (W m <sup>-1</sup> °C <sup>-1</sup> )

## 1. Introduction

The aim of this study was to develop a relatively short-time method (<90 s) using a low-cost probe to estimate simultaneously thermal effusivity and thermal conductivity from a single temperature recording. The thermal effusivity is defined as

$$E = \sqrt{\lambda\rho c},$$

where  $E$  is the thermal effusivity ( $\text{J m}^{-2} \text{ }^\circ\text{C}^{-1} \text{ s}^{-1/2}$ ),  $\lambda$  is the thermal conductivity ( $\text{W m}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ),  $\rho$  is the density ( $\text{kg m}^{-3}$ ) and  $c$  is the specific heat ( $\text{J kg}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ). This method is dedicated to high conductivity materials ( $>6 \text{ W m}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ) for which the semi-infinite medium hypothesis is true only for low values of the ratio of the measuring time to the sample dimensions. All the methods based on the hypothesis of a semi-infinite medium for the sample are thus limited to this type of material (hot plate [1], hot wire [2, 3], hot strip [4–7] or hot disc [8]) since they need to work with very large dimension samples or have too short an estimation time to reach an acceptable precision. Nevertheless, some devices allowing the simultaneous estimation of thermal effusivity and conductivity of thermally finite samples have been achieved; they are all based on the processing of transient measurement of the temperature of a heating probe set between two samples of the material to be characterized.

The main devices are as follows.

- (1) The hot strip method with imposed temperature on the unheated faces as studied by Ladevie [9]. Its main disadvantages are the experimentation duration ( $>5 \text{ mn}$ ), complex data processing and the need to estimate the convective heat losses on the sample lateral faces. Moreover, this method is dedicated to low conductivity materials.
- (2) The DPS method (dynamic plane source) introduced by Malinarič [10]. In this method, the probe mass is neglected and the parameter estimation interval is chosen so that the influence of the thermal contact resistance is minimized. This choice remains an uncertainty factor difficult to estimate.
- (3) The periodic method developed by Boudenne *et al* [11] in which a sample inserted between two metallic masses is submitted to a periodical heat flux. This method is relatively complex to carry out (more complex heat flux to be generated, partial vacuum enclosure, thermally conductive grease to be put on the sample faces to minimize thermal contact resistances).

The proposed device represented in figure 1 is based on the use of a simple heating element inserted between a plane face sample of the material to be characterized and a sample of an insulating material (polystyrene) of perfectly known thermal effusivity. The heating element and the samples have the same area so that the heat transfer may be considered as unidirectional as long as the convective heat losses are negligible. The initial temperature distribution in the sample and in the heating element is uniform. A first thermocouple is set on the heating element face in contact with the insulating material (front face). A second thermocouple is fixed on the unheated face of the sample in contact with the insulating

material (rear face). The sample thickness is chosen so that the hypothesis of a semi-infinite medium for the sample remains true for at least 30 s. The principle of the method is to use the front face temperature  $T_0(t)$  recording at the beginning (when  $T_0(t)$  is insensitive to the thermal conductivity  $\lambda$  and when convective heat losses may be neglected) to estimate the sample thermal effusivity  $E$ , the thermal capacity  $mc$  of the heating element and the thermal contact resistances  $R_{c1}$  and  $R_{c2}$  on the two faces of the heating element. A complete modelling of heat transfer in the sample to be characterized and in the insulating samples associated with a parameter estimation method will then be used to estimate the thermal conductivity  $\lambda$  of the sample by processing the rear face temperature  $T_2(t)$  recording. The time estimation interval is 0–90 s when the convective heat losses are negligible.

The main advantages of this method are the very low cost of the probe, a simple to use device and an estimation method based on a complete simulation model of the front face temperature  $T_0(t)$  and of the rear face temperature  $T_2(t)$ . This method does not need either the estimation of the lateral face heat losses or the choice of a restricted time interval for the parameter estimation.

## 2. Modelling

Using the quadrupole formalism presented by Maillet *et al* [12], neglecting the convection lateral heat losses and considering the heating element as a thin system (no thermal gradient in its thickness), the following matrix relations can be written:

$$\begin{bmatrix} \theta_0 \\ \Phi_{01} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ mcp & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & R_{c1} \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & R_{c2} \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \\ \times \begin{bmatrix} \theta_3 \\ E_i \\ S\sqrt{p}\theta_3 \end{bmatrix}$$

$$\begin{bmatrix} \theta_0 \\ \Phi_{04} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & R_{c3} \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_4 \\ E_i \\ S\sqrt{p}\theta_4 \end{bmatrix}$$

$$\frac{\varphi_0}{p} = \Phi_{01} + \Phi_{04}$$

where

$$\begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \text{ch}(qe) & \frac{1}{\lambda q S} \text{sh}(qe) \\ \lambda q S \text{ch}(qe) & \text{ch}(qe) \end{bmatrix} \quad \text{with } q = \sqrt{\frac{p}{a}}$$

and

- $\theta_0$  is the Laplace transform of the difference  $T_0(t) - T_0(t=0)$ ,
- $\theta_3$  is the Laplace transform of the difference  $T_3(t) - T_3(t=0)$ ,
- $R_{c1}$  is the contact resistance at the interface sample/heating element ( $^\circ\text{C W}^{-1}$ ),
- $R_{c2}$  is the contact resistance at the interface sample/insulating material ( $^\circ\text{C W}^{-1}$ ),
- $R_{c3}$  is the contact resistance at the interface heating element/insulating material ( $^\circ\text{C W}^{-1}$ ),
- $m$  is the mass of the heating element (kg),
- $c$  is the specific heat of the heating element ( $\text{J kg}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ),
- $E$  is the thermal effusivity of the material to be characterized ( $\text{J m}^{-2} \text{ }^\circ\text{C}^{-1} \text{ s}^{-1/2}$ ),

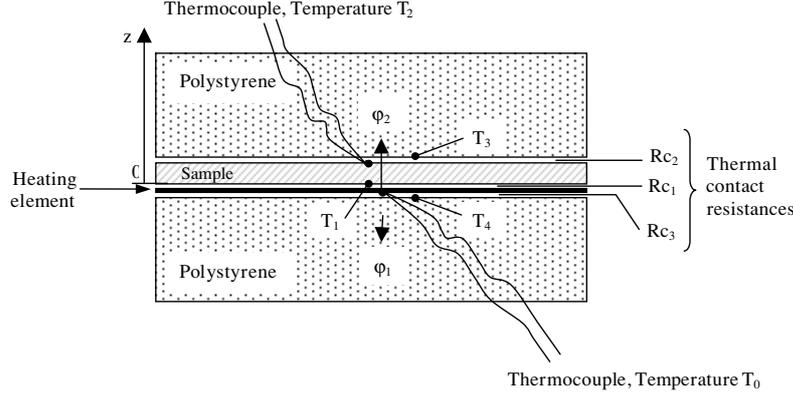


Figure 1. Experimental device.

- $E_i$  is the thermal effusivity of the insulating material ( $\text{J m}^{-2} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1} \text{ s}^{-1/2}$ ),
- $a$  is the thermal diffusivity of the material to be characterized ( $\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$ ),
- $p$  is the Laplace parameter,
- $S$  is the heating element area ( $\text{m}^2$ ),
- $\varphi_0$  is the heat flux produced in the heating element (W).

The first matrix relation may also be written as

$$\begin{bmatrix} \theta_0 \\ \Phi_{01} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_{03} & B_{03} \\ C_{03} & D_{03} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_3 \\ E_i S \sqrt{p} \theta_3 \end{bmatrix}$$

where

$$\begin{bmatrix} A_{03} & B_{03} \\ C_{03} & D_{03} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} (A + R_{c1}C) & \\ mcpA + (1 + mcpR_{c1})C & \\ (A + R_{c1}C)R_{c2} + (B + R_{c1}D) & \\ [mcpA + (1 + mcpR_{c1})C]R_{c2} + mcpB + (1 + mcpR_{c1})D & \end{bmatrix}$$

It can be deduced that

$$\theta_0(p) = \frac{\frac{\varphi_0}{p}}{\frac{C_{03} + D_{03} E_i S \sqrt{p}}{A_{03} + B_{03} E_i S \sqrt{p}} + \frac{E_i S \sqrt{p}}{1 + R_{c3} E_i S \sqrt{p}}} \quad (1)$$

The thermal balance between the heating element and the rear face of the sample at temperature  $T_2(t)$  can also be written as

$$\begin{bmatrix} \theta_0 \\ \Phi_{01} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ mcp & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & R_{c1} \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_2 \\ \Phi_2 \end{bmatrix} \\ = \begin{bmatrix} A_{02} & B_{02} \\ C_{02} & D_{02} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_2 \\ \Phi_2 \end{bmatrix}$$

where

$$\begin{bmatrix} A_{02} & B_{02} \\ C_{02} & D_{02} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A + R_{c1}C & B + R_{c1}D \\ mcpA + (1 + mcpR_{c1})C & mcpB + (1 + mcpR_{c1})D \end{bmatrix}$$

By combining the previous relation with the following one:

$$\begin{bmatrix} \theta_0 \\ \Phi_{01} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_{03} & B_{03} \\ C_{03} & D_{03} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_3 \\ E_i S \sqrt{p} \theta_3 \end{bmatrix}$$

the Laplace transform of the rear face temperature can be deduced as

$$\theta_2(p) = \left[ D_{02} - B_{02} \frac{C_{03} + D_{03} E_i S \sqrt{p}}{A_{03} + B_{03} E_i S \sqrt{p}} \right] \theta_0(p). \quad (2)$$

Applying the inverse Laplace transform by the Stehfest method [13], the temperatures  $T_0(t)$  and  $T_2(t)$  may finally be calculated by

$$T_i(t) = \frac{\ln(2)}{t} \sum_{j=1}^{n_L} V_j \theta_i \left( \frac{j \ln(2)}{t} \right)$$

where  $V_1 = 0.0833333$ ,  $V_2 = -32.0833$ ,  $V_3 = 1279$ ,  $V_4 = -15623.667$ ,  $V_5 = 84244.167$ ,  $V_6 = -36957.5$ ,  $V_7 = 375911.667$ ,  $V_8 = -340071.667$ ,  $V_9 = 164062.5$  and  $V_{10} = -32812.5$ .

The lateral convective losses can be taken into account in a simple way with the hypothesis that the temperature is uniform in any plane parallel to the front face. In this case studied by Ladevie [9], all the previous relations remain valid when replacing the Laplace parameter  $p$  by

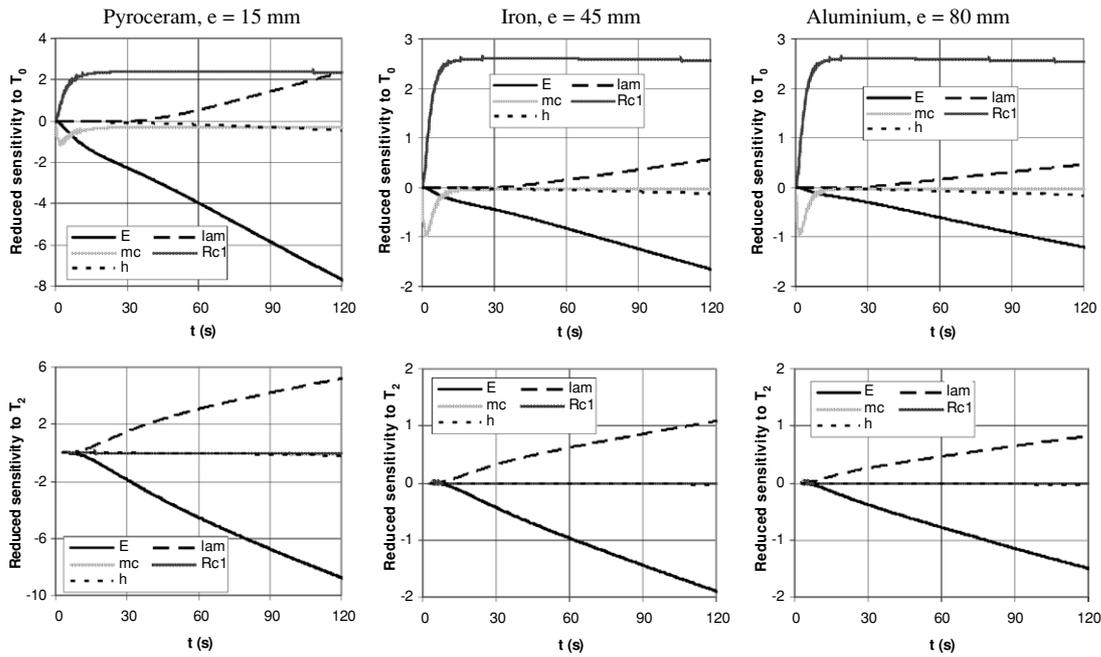
$$p + \frac{h a p_e}{\lambda S}$$

where  $p_e$  is the perimeter of the sample lateral area (m),  $a$  is the sample diffusivity ( $\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$ ),  $h$  is the convective heat transfer coefficient ( $\text{W } ^\circ\text{C}^{-1} \text{ m}^{-2}$ ),  $\lambda$  is the sample thermal conductivity ( $\text{W } ^\circ\text{C}^{-1} \text{ m}^{-1}$ ) and  $S$  is the heating element area ( $\text{m}^2$ ).

Actually, the temperature of the sample lateral faces is slightly lower than the average temperature and than the centre temperature in the same plane, so that the lateral heat losses are overestimated in the simplified expression proposed by Ladevie [9].

### 3. Sensitivity analysis

Using relations (1) and (2) of the complete model and the Stehfest method, the reduced sensitivities of the two temperatures  $T_0(t)$  and  $T_2(t)$  to the parameters  $E$ ,  $\lambda$ ,  $R_{c1}$  and  $mc$  have been calculated numerically. The reduced sensitivity of the temperature  $T$  to a parameter  $X$  is defined as  $X \frac{\partial T}{\partial X}$ . The sample thickness has been chosen so that the sensitivity of  $T_0(t)$  to  $\lambda$  is negligible between 0 and 30 s to allow an accurate estimation of the effusivity  $E$ . It has been checked that the sensitivities of  $T_0(t)$  and  $T_2(t)$  to the thermal contact resistances  $R_{c1}$  and  $R_{c3}$  with the insulating material are totally negligible. Their values have been fixed to  $10^{-10} \text{ } ^\circ\text{C W}^{-1}$  because higher values for  $R_{c2}$  lead to numerical instabilities on  $T_2(t)$  for short time values. The theoretical results obtained for pyroceram



**Figure 2.** Reduced sensitivity of  $T_0(t)$  and  $T_2(t)$  to the parameters  $E$ ,  $mc$ ,  $R_{c1}$  and  $\lambda$ .

( $\lambda = 3.98 \text{ W m}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ,  $E = 2892 \text{ J m}^{-2} \text{ }^\circ\text{C}^{-1} \text{ s}^{-1/2}$ ,  $a = 1.89 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ), for iron ( $\lambda = 72.7 \text{ W m}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ,  $E = 115992 \text{ J m}^{-2} \text{ }^\circ\text{C}^{-1} \text{ s}^{-1/2}$ ,  $a = 2.07 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ) and for aluminium ( $\lambda = 204 \text{ W m}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ,  $E = 15567 \text{ J m}^{-2} \text{ }^\circ\text{C}^{-1} \text{ s}^{-1/2}$ ,  $a = 8.418 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ) are plotted as an example in figure 2; the physical properties used in the calculation are extracted from [14]. Calculations have been done with the following values:  $S = 24.5 \text{ cm}^2$ ,  $mc = 2.0 \text{ J }^\circ\text{C}^{-1}$  and  $S R_{c1} = 0.002 \text{ }^\circ\text{C m}^2 \text{ W}^{-1}$ .

One can note that the sensitivity of  $T_0$  to the thermal capacity  $mc$  of the heating element is constant only after 15 s so that a model neglecting the heating element inertia (with  $mc = 2.0 \text{ J }^\circ\text{C}^{-1}$ ) could not process the first 15 s of the temperature  $T_0(t)$  recording. This emphasizes the interest of using a complete model. The temperature  $T_2(t)$  is not sensitive to the parameter  $mc$ .

The sensitivity of  $T_0$  to the thermal contact resistance  $R_{c1}$  between the heating element and the sample becomes constant only after 15 s as for  $mc$ .

The sensitivity of  $T_0$  to  $h$  (overestimated in our estimation as pointed out previously and calculated with  $h = 10 \text{ W m}^{-2} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ) is negligible for times lower than 30 s.

The sensitivity of  $T_0$  to  $\lambda$  is also negligible between 0 and 30 s. The sensitivity of  $T_0$  to  $E$  is increasing and uncorrelated with the sensitivities to  $mc$  and  $R_{c1}$  between 0 and 30 s; this will allow a precise estimation of  $E$  on this time interval. One could think of using the temperature  $T_0(t)$  between 30 and 90 s to estimate  $\lambda$  but the sensitivities of  $T_0$  to the parameters  $\lambda$  and  $h$  are correlated on this time interval preventing any separate estimation. The estimation of  $\lambda$  becomes possible when the transverse dimensions of the samples are great compared to its thickness. In this case, the temperature at the centre of the heating element is independent of the lateral heat losses over a sufficiently long time for a correct estimation of  $\lambda$ .

The temperature  $T_2$  is only sensitive to the parameter  $E$  and between 0 and 90 s; a low sensitivity to the parameter  $h$

(with  $h = 10 \text{ W m}^{-2} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ) appears after 90 s for pyroceram. After having estimated  $E$  between 0 and 30 s by a hot plate type model applied to  $T_0(t)$ , it will thus be possible to estimate  $\lambda$  with a good precision using a complete model for  $T_2(t)$  between 0 and 90 s.

It can be noted that the considered thickness is the minimum acceptable value for each material. The parameter estimation is still possible for any greater value of the thickness but it will require a time estimation longer than 90 s to keep the temperature  $T_2(t)$  sufficiently increasing.

#### 4. Parameter estimation method

Initial values are given to the parameters  $E$ ,  $mc$  and  $R_{c1}$ , and the values of  $R_{c2}$  and  $R_{c3}$  are fixed equal to  $10^{-10} \text{ }^\circ\text{C W}^{-1}$ . The theoretical curve  $T_0(t)$  is calculated using the Stehfest method to relation (1). The Newton method integrated in the solver function of a common spreadsheet is used to estimate the values of the parameters  $E$ ,  $mc$  and  $R_{c1}$  minimizing the sum of the quadratic error between the theoretical and experimental curves  $T_0(t)$  between 0 and 30 s. These values are then considered as known data.

An initial value is given to the thermal conductivity  $\lambda$ . The theoretical curve  $T_2(t)$  is calculated by applying the Stehfest method to relation (2). As previously done, the Newton method integrated in the solver function of a common spreadsheet is used to estimate the value of the parameter  $\lambda$  minimizing the sum of the quadratic errors between the theoretical and experimental curves  $T_2(t)$  between 0 and typically 90 s.

#### 5. Experimental results and discussion

The heating element used was a Minco HK 5592 in kapton, with an electrical resistance of  $53.9 \text{ } \Omega$  and an area of  $44.5 \times 44.5 \text{ mm}^2$ .

**Table 1.** Mean experimental values obtained with the hot plate device with two temperature measurements, with the hot disc and with the differential scanning calorimeter.

		Titanium alloy TA6V	Steel Z35CDV5	Steel A60	Aluminium alloy AU4G
Hot plate	$E$ ( $\text{J m}^{-2} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1} \text{ s}^{-1/2}$ )	4020 (0.8)	9565 (3.1)	13 771 (2.0)	18 073 (1.8)
	$\lambda$ ( $\text{W m}^{-1} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ )	6.61 (1.1)	25.6 (5.0)	52.6 (2.9)	138.5 (2.4)
	$a$ ( $\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$ )	$2.70 \times 10^{-6}$ (0.9)	$7.16 \times 10^{-6}$ (5.7)	$1.45 \times 10^{-5}$ (4.0)	$5.88 \times 10^{-5}$ (2.2)
	$\rho c$ ( $\text{J m}^{-3} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ )	$2.44 \times 10^6$ (0.8)	$3.62 \times 10^6$ (3.1)	$3.58 \times 10^6$ (2.9)	$2.36 \times 10^6$ (1.9)
Hot disc	$\lambda$ ( $\text{W m}^{-1} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ )	6.60	27.3	55.5	155.3
	$a$ ( $\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$ )	$2.83 \times 10^{-6}$	$7.28 \times 10^{-6}$	$1.55 \times 10^{-5}$	$5.80 \times 10^{-6}$
DSC + volumeter	$\rho c$ ( $\text{J m}^{-3} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ )	$2.32 \times 10^6$	$3.35 \times 10^6$	$3.54 \times 10^6$	$2.20 \times 10^6$
Deviation hot plate/ hot disc	$\lambda$ (%)	0.2	6.3	5.2	10.8
	$a$ (%)	4.6	1.6	6.5	1.4
Deviation hot plate/DSC	$\rho c$ (%)	5.4	5.3	1.0	7.4

Note. The values within parentheses denote standard deviation (%).

Temperatures have been measured with type  $T$  thermocouples made of wires 0.003 mm in diameter. The measurement of the rear face temperature  $T_2$  has been realized with separated contacts since the tested samples were electrical conductors. The front face temperature  $T_0$  has been measured by a thermocouple fixed on the face of the heating element in contact with the thermal insulator to limit the thermal contact resistance  $R_{c1}$  between the heating element and the sample. The cold junction of the thermocouples was inserted into isothermal metallic pieces and the electrical tensions were recorded with an Almemo 2290-5 apparatus. The acquisition time was 0.1 s and the resolution was  $1 \mu\text{V}$  corresponding to  $0.025 \text{ } ^\circ\text{C}$  for a type  $T$  thermocouple.

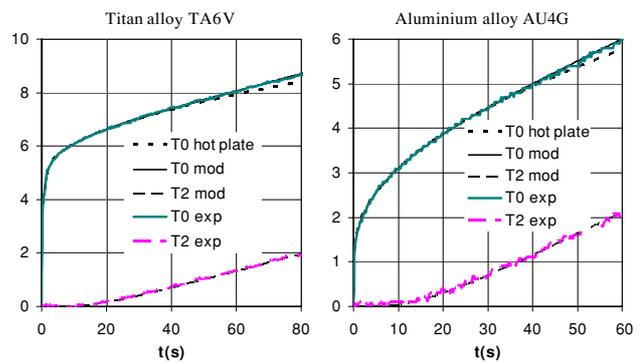
The tested samples were the following:

- Titanium alloy TA6V with dimensions  $44.5 \times 44.5 \times 16.7 \text{ mm}^3$ .
- Steel Z35CDV5 with dimensions  $44.5 \times 44.5 \times 28 \text{ mm}^3$ .
- Steel A60 with dimensions  $44.5 \times 44.5 \times 50 \text{ mm}^3$ .
- Aluminium alloy AU4G with dimensions  $44.5 \times 44.5 \times 80 \text{ mm}^3$ .

Five measurements have been realized on each sample with the described device. The thermal diffusivity and conductivity have also been measured on the same samples with the ‘hot disc thermal constant analyser’ apparatus. The thermal capacity  $c$  has been measured with the differential scanning calorimeter ‘Setaram TG-DSC111’ and the density  $\rho$  has been measured with the mercury volumeter described by Talla *et al* [15].

All the results are reported in table 1; the results for the hot plate method are the average of five measurements. One can note a good fit between the values measured by our hot plate method and those measured with the hot disc: the mean deviation is 5.6% for the thermal conductivity  $\lambda$  and 3.5% for the thermal diffusivity  $a$ . A good fit may also be noted between the values of the product  $\rho c$  measured by our hot plate method and those measured with the DSC + volumeter: the mean deviation is 4.8%.

As an example, figure 3 presents the experimental and theoretical curves  $T_0(t)$  and  $T_2(t)$  obtained with titanium alloy TA6V and with aluminium alloy AU4G. The fitting between the curves is quite satisfying.



**Figure 3.** Experimental and theoretical curves  $T_0(t)$  and  $T_2(t)$  ( $^\circ\text{C}$ ) obtained with titanium and aluminium alloys.

(This figure is in colour only in the electronic version)

## 6. Conclusion

This study has shown that it is possible to estimate simultaneously with an acceptable precision the thermal conductivity and effusivity of high conductivity materials ( $>6 \text{ W m}^{-1} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ ) with a simple low-cost device: a transient hot plate applied to a single sample with recording of the front and rear face temperatures measured with thermocouples. The specificity of the method is based on the use of all the recorded temperature measurements and on the simplicity of the parameter estimation method: the estimation is realized using the solver function of a very common spreadsheet. The method has been tested on four metallic alloys with thermal conductivities varying from 6 to  $140 \text{ W m}^{-1} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$  with quite satisfying results since the average deviation from measurements realized with a hot disc or a scanning differential calorimeter was around 5%.

## References

- [1] Hladik J 1990 *Métrie des propriétés thermophysiques des matériaux* (Paris: Masson)
- [2] Abu-Hamdeh N H, Khair A I and Reeder R C 2001 A comparison of two methods used to evaluate thermal conductivity of some soils *Int. J. Heat Mass Transfer* **44** 1073–8

- [3] De Sylos Cintra J and Dos Santos W N 2000 Numerical analysis of sample dimensions in hot wire thermal conductivity measurements *J. Eur. Ceram. Soc.* **20** 1871–5
- [4] Jannot Y and Meukam P 2004 Simplified estimation method for thermal effusivity and conductivity determination with a low cost hot strip *Meas. Sci. Technol.* **15** 1932–8
- [5] Gustafsson S E, Karawacki E and Khan M N 1979 Transient hot-strip method for simultaneously measuring thermal conductivity and thermal diffusivity of solids and fluids *Appl. Phys.* **12** 1411–20
- [6] Lourenco M J, Rosa S C S, Nieto de Castro C A, Albuquerque C, Erdmann B, Lang J and Roitzsch R 2000 Simulation of the transient heating in an unsymmetrical coated hot-strip sensor with a self adaptative finite element method *Int. J. Thermophys.* **21** 377–84
- [7] Song Y W, Grob U and Hahne E 1993 A new method for thermal diffusivity and thermal conductivity evaluation from transient hot strip measurement *Fluid Phase Equilib.* **88** 291–302
- [8] Gustavsson M, Karawacki E and Gustafsson S E 1994 Thermal conductivity, thermal diffusivity and specific heat of thin samples from transient measurements with hot disk sensors *Rev. Sci. Instrum.* **65** 3856–9
- [9] Ladevie B 1998 Mise au point de dispositifs de caractérisation thermophysique de matériaux isolants solides ou pâteux. Extension aux fluides cisailés *Thèse ENSAM, Bordeaux*
- [10] Malinarič S 2004 Parameter estimation in dynamic plane source method *Meas. Sci. Technol.* **15** 807–13
- [11] Boudenne A, Ibos L, Gehin E and Candau Y 2004 A simultaneous characterization of thermal conductivity and diffusivity of polymer materials by a periodic method *J. Phys. D: Appl. Phys.* **37** 132–9
- [12] Maillet D, André S, Batsale J-C, Degiovanni A and Moyne C 2000 *Thermal Quadrupoles* (New York: Wiley)
- [13] Stehfest H 1970 Algorithm 368, numerical inversion of Laplace transforms *Commun. ACM* **13** 47–9
- [14] Incropera F P and DeWitt D P 2002 *Introduction to Heat Transfer* 4th edn (New York: Wiley)
- [15] Talla A, Puiggali J-R, Jomaa W and Jannot Y 2004 Shrinkage and density evolution during drying of tropical fruits: application to banana *J. Food Eng.* **64** 103–9

# A quadrupolar complete model of the hot disc

Yves Jannot<sup>1</sup> and Zoubir Acem<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire LEMTA, 2 avenue de la Forêt de Haye, 54504 Vandoeuvre les Nancy, France

<sup>2</sup> Laboratoire TREFLE, Esplanade des Arts et Métiers, 33405 Talence Cedex, France

E-mail: [yves.jannot@ensem.inpl-nancy.fr](mailto:yves.jannot@ensem.inpl-nancy.fr)

Received 10 October 2006, in final form 8 January 2007

Published 6 March 2007

Online at [stacks.iop.org/MST/18/1229](http://stacks.iop.org/MST/18/1229)

## Abstract

The hot disc method is a transient plane source method used for the estimation of the thermal conductivity and diffusivity of solid materials. A complete model based on the thermal quadrupoles formalism has been developed to represent the hot disc temperature variation. This model takes into account both the thermal contact resistance between the solid to be characterized and the hot disc and the thermal inertia of the hot disc. It makes it possible to realize the parameters estimation on all the recorded temperature measurements. This model is used to highlight the estimation uncertainty due to approximations in the heat transfer model.

**Keywords:** transient hot disc, thermal quadrupoles, model, mass sensitivity, conductivity, diffusivity, parameter estimation

(Some figures in this article are in colour only in the electronic version)

## Nomenclature

$a$	thermal diffusivity ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ )
$c$	specific heat of the hot disc ( $\text{J kg}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ )
$D$	characteristic function of the hot disc
$dt$	recording time step (s)
$e$	sample thickness (m)
$I$	transfer function in Laplace space
$I_0$	modified Bessel function of the first kind of order zero
$J_1$	Bessel function of the first kind of order one
$m$	mass of the hot disc (kg)
$n$	number of concentric resistive rings
$p$	Laplace parameter
$r_0$	hot disc radius (m)
$R_c$	thermal contact resistance ( $^\circ\text{C W}^{-1}$ )
$S$	hot disc area ( $\text{m}^2$ )
$T$	hot disc mean temperature ( $^\circ\text{C}$ )
$V_j$	coefficients of the Stehfest algorithm
$X$	sensitivity matrix of $T$
$Z_c$	constriction impedance
$Z_{cs}$	approximate value of the constriction impedance
$\theta$	Laplace transform of the hot disc mean temperature
$\theta_{se}$	Laplace transform of the mean temperature of the sample surface
$\phi_0$	heat flux dissipated in the hot disc (W)

$\Phi$	Laplace transform of the hot disc heat flux
$\Phi_{se}$	Laplace transform of the heat flux on the sample surface
$\lambda$	thermal conductivity ( $\text{W m}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ )
$\rho$	hot disc density
$\tau$	dimensionless time

## Subscripts

$n$	number of double spirals
$\infty$	hot disc with uniform heat flux

## 1. Introduction

The hot disc method is an experimental method designed for the estimation of the thermal conductivity and thermal diffusivity of solid samples. This transient plate source method is based on the heating of a plane double resistive spiral sandwiched between two samples of the material to be characterized. The recording of the mean temperature of the heating element with an estimation parameters method applied to a theoretical model makes it possible to estimate thermal conductivity and thermal diffusivity of the samples from a single experiment. This method was studied and used by many authors (Gustafsson 1991, Bohac *et al* 2000, Malinaric 2004, He 2005).

The setting up of this method still raises some questions:

- The theoretical model of the hot disc temperature evolution was published in the form of an infinite integral (Gustafsson 1991, He 2005) without specifying, to our knowledge, by which mathematical function this integral is represented for use. It can be noted that the model considers the resistive spiral as concentric resistive rings with negligible width.
- The proposed simplified model does not take into account the influence of the hot disc inertia. During the parameter estimation process, the first points of the recorded temperature (corresponding to times lower than a certain time  $t_1$ ) are not taken into account. The time  $t_1$  is empirically estimated (Bohac *et al* 2000): several successive estimations on intervals  $[t, t_2]$  are realized, where  $t_2$  is a constant and selected so that the dimensionless time  $\tau_2 = \sqrt{\frac{at_2}{r^2}}$  is equal to 1.0, where  $a$  is the thermal diffusivity of the sample and  $r$  is the radius of the hot disc probe. The time  $t$  is progressively increased by starting from  $t = 0$  s. Up to a certain time  $t_1$ , the estimated values of the parameters vary very weakly and the interval  $[t_1, t_2]$  is then selected for the estimation.

The aim of this study is to establish a quadrupolar model of heat transfer during a hot disc experience in order to estimate the temperature sensitivity to the following parameters: thermal conductivity  $\lambda$ , thermal diffusivity  $a$ , thermal contact resistance  $R_c$  and hot disc thermal capacity  $mc$ .

Furthermore, this model must make possible the estimation of all these parameters. The interest of such a complete model is to take into account all experimental points without empirically removing a certain number of them.

Another purpose of this work is to evaluate the estimation errors on thermal conductivity and diffusivity due to the imperfection of the model used for heat transfer representation in a hot disc/sample system.

## 2. Modelling

### 2.1. Simplified model

Considering a hot disc assimilated to  $n$  uniformly spaced concentric thin rings of a resistive material, it has been shown that the mean temperature  $T$  of the disc submitted to a total output power  $\varphi_0$  can be written as (Gustafsson 1991)

$$T(t) = \frac{\varphi_0}{\pi^{3/2}r_0\lambda} D_n(\tau) \quad (1)$$

with  $\tau = \sqrt{\frac{at}{r_0^2}}$  where  $a$  is the thermal diffusivity of the sample,  $\lambda$  is the thermal conductivity of the sample and  $r_0$  is the hot disc radius and

$$D_n(\tau) = [n(n+1)]^{-2} \int_0^\tau d\sigma \sigma^{-2} \times \left[ \sum_{l=1}^n l \sum_{k=1}^n k \exp\left(-\frac{l^2+k^2}{4n^2\sigma^2}\right) I_0\left(\frac{lk}{2n^2\sigma^2}\right) \right] \quad (2)$$

where  $n$  is the number of concentric resistive rings of the hot disc,  $I_0$  is the modified Bessel function of the first kind of order zero.

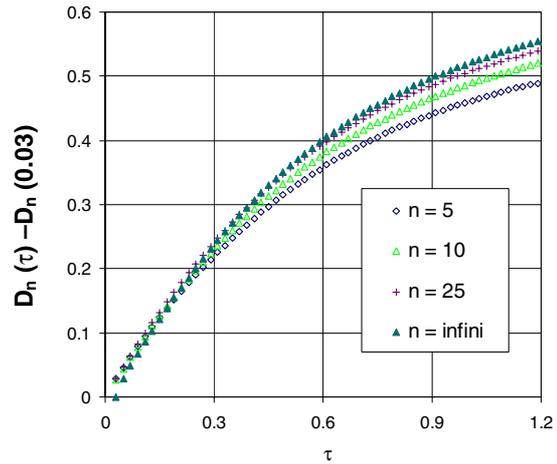


Figure 1. Functions  $D_n(\tau) - D_n(0.03)$ .

If the space between the resistive rings becomes very thin, this solution tends towards

$$D_\infty(\tau) = \int_0^\tau d\sigma \sigma^{-2} \int_0^1 v dv \int_0^1 u du \times \exp\left(-\frac{u^2+v^2}{4\sigma^2}\right) I_0\left(\frac{uv}{2\sigma^2}\right). \quad (3)$$

The numerical calculation of  $D_n(\tau)$  and  $D_\infty(\tau)$  is not possible near zero (for  $\tau < 0.03$ ) because relations (2) and (3) lead to an infinite limit when  $\tau$  tends towards zero.

By assuming the hot disc as concentric resistive rings of infinitely small width, the relations (2) and (3) do not allow a good representation of hot disc temperature variation at very short times. Indeed, one can see that the resistive rings width does not appear in these two relations.

Thus, we calculate  $D_n(\tau) - D_n(0.03)$  and  $D_\infty(\tau) - D_\infty(0.03)$  and represent them by a six degree polynomial as  $P_n(\tau) = b_0 + b_1\tau + b_2\tau^2 + b_3\tau^3 + b_4\tau^4 + b_5\tau^5 + b_6\tau^6$

So, one can deduce that  $D_n(\tau) = P_n(\tau) + D_n(0.03)$  and as  $D_n(0) = 0$ :

$$D_n(\tau) = D_n(0.03) + b_0 + b_1\tau + b_2\tau^2 + b_3\tau^3 + b_4\tau^4 + b_5\tau^5 + b_6\tau^6.$$

Table 1 and figure 1 present, respectively, the coefficients of each polynomial and the representative curves of the corresponding functions.

It can be noted that the coefficient  $b_1$  tends towards 1 for an infinite number of resistive rings (uniform flux). Then, at short time, we have  $D_\infty(\tau) \approx D_\infty(0.03) + b_0 + \tau$  and so:

$$\begin{aligned} T(t) &= \frac{\varphi_0 [D_\infty(0.03) + b_0 + \tau]}{\pi^{3/2}r_0\lambda} \\ &= \frac{\varphi_0 [D_\infty(0.03) + b_0 + \sqrt{\frac{at}{r_0^2}}]}{\pi^{3/2}r_0\lambda} \\ &= \frac{\varphi_0}{\pi r_0^2 \sqrt{\pi} E} \sqrt{t} + \frac{\varphi_0 [D_\infty(0.03) + b_0]}{\pi^{3/2}r_0\lambda}. \end{aligned}$$

Considering a uniform flux, we must find the hot plate equation at short time. Thus, we deduce that for an infinite number of resistive rings  $b_0 = -D_\infty(0.03)$ .

With a finite number  $n$  of concentric resistive rings, function  $D_n(\tau)$  is known only for  $\tau > 0.03$ :

$$D_n(\tau) = c_0 + b_1\tau + b_2\tau^2 + b_3\tau^3 + b_4\tau^4 + b_5\tau^5 + b_6\tau^6,$$

**Table 1.** Coefficient values of polynomials  $D_n(\tau) - D_n(0.03)$ .

	$n = 5$	$n = 8$	$n = 10$	$n = 16$	$n = 25$	$n = 32$	$n = \infty$
$b_1$	0.9596	0.905 57	0.914 1	0.938 6	0.956 4	0.963 8	0.996 7
$b_2$	-1.0872	-0.539 3	-0.494 2	-0.481 2	-0.483 7	-0.486 1	-0.498 6
$b_3$	1.5965	0.121 1	-0.032 90	-0.132 2	-0.170 3	-0.182 8	-0.225 7
$b_4$	-1.9920	-0.081 65	0.120 6	0.256 1	0.312 3	0.331 9	0.400 6
$b_5$	1.3271	0.121 5	-0.003 580	-0.084 52	-0.117 8	-0.129 5	-0.170 8
$b_6$	-0.3437	-0.046 20	-0.016 10	0.002 431	0.009 822	0.012 43	-0.021 65

where  $c_0$  is an unknown constant which does not affect the shape of the curve  $D_n(\tau)$ , it merely causes a constant time lag on  $T(t)$  proportional to  $\varphi_0$  and inversely proportional to  $\lambda$ .

This ‘ideal’ solution has been established for a probe with negligible mass and a contact resistance  $R_c$  between the probe and the sample.

For taking contact resistance  $R_c$  into account, it has been assumed that after a certain time the effect of the contact resistance consists merely of a constant shift of the temperature compared to the ideal model (Gustafsson 1991). With his hypothesis one can write

$$T(t) = \frac{\varphi_0}{\pi^{3/2}r_0\lambda} D(\tau) + R_c\varphi_0. \quad (4)$$

This solution is valid on the assumption that the sample can be regarded as a semi-infinite medium during the time of measurement, i.e. if  $d \geq \sqrt{2at_f}$ , where  $d$  is the smallest distance from the probe to the external surface of the sample and  $t_f$  is the duration of the experiment (Log and Gustafsson 1995).

This simplified modelling does not allow the estimation of the time after which the influence of contact resistance and probe inertia are perfectly represented by a shift on the temperature, as indicated in relation (4).

## 2.2. Complete model

Contact resistance and hot disc mass are taken equal to zero. For a hot disc of radius  $r_0$  placed between two semi-infinite samples and subjected on its surface to a homogeneous heat flux  $2\varphi_0$ , it has been shown that the Laplace transform of the mean temperature elevation is (Maillet *et al* 2000)

$$\theta(p) = Z_c \frac{\varphi_0}{p} = \frac{\varphi_0}{p} \frac{2}{\pi r_0 \lambda} \int_0^\infty \frac{[J_1(\varepsilon)]^2}{\varepsilon \sqrt{\varepsilon^2 + \frac{pr_0^2}{a}}} d\varepsilon. \quad (5)$$

An approximated value  $Z_{cs}$  of the constriction impedance  $Z_c$  has been proposed as

$$Z_{cs} = \frac{8}{3\pi^2\lambda r_0 \left(1 + \frac{8}{3\pi} \sqrt{\frac{pr_0^2}{a}}\right)}. \quad (6)$$

The deviations between  $Z_c$  and  $Z_{cs}$  are not negligible since  $Z_{cs}$  values lead to satisfactory asymptotic representations of  $Z_c$ .

Thus, a more precise  $Z_c$  expression has been researched by using an asymptotic development of the Bessel function  $J_1$  to infinity. Numerical calculation leads to the following result:

$$Z_c = \frac{2}{\pi r_0 \lambda} I(p) \quad (7)$$

with

$$I(p) = \frac{1 + 0.38248\sqrt{p^*}}{2.35606 + 2.28682\sqrt{p^*} + 0.76496p^*} \quad (8)$$

where  $p^* = \frac{pr_0^2}{a}$ .

**Table 2.** Coefficient values of polynomial functions  $I_n(p)$ .

$n$	5	8	10	16	25	32
$d_1$	6.8559	0.7223	0.6458	0.5999	0.5759	0.5631
$e_0$	10.3827	5.2843	5.1859	5.0855	5.0134	4.9796
$e_1$	29.4882	6.0943	5.7153	5.3948	5.2233	5.1490
$e_2$	30.2988	3.2558	2.8785	2.6027	2.4525	2.3806

The calculation of the  $D_\infty(\tau)$  function is done by inversion of the previous expression with the Stehfest method (Stehfest 1970) leading to

$$D_\infty(\tau) = \frac{\pi^{3/2}\lambda r_0}{\varphi_0} L^{-1}[\theta(p)]. \quad (9)$$

The relative deviations between  $D_\infty(\tau)$  values, calculated with formulae (3) and (9), are lower than 1% for  $\tau < 1.2$ , showing the equivalence of the two approaches. The interest of relation (8) is to make it possible to take into account the probe inertia and the contact resistance in a complete quadrupolar model.

From  $D_n(\tau)$  functions,  $I_n(p)$  functions can be determined thanks to the relation

$$\frac{\varphi_0}{\pi^{3/2}r_0\lambda} D_n(\tau) = L^{-1} \left[ \frac{\varphi_0}{p} \frac{2}{\pi r_0 \lambda} I_n(p) \right], \quad (10)$$

i.e.,

$$\frac{1}{2\sqrt{\pi}} D_n(\tau) = L^{-1} \left[ \frac{1}{p} I_n(p) \right].$$

These functions have been researched in the form

$$I_n(p) = c_0 + \frac{1 + d_1\sqrt{p}}{e_0 + e_1\sqrt{p} + e_2p}. \quad (11)$$

The coefficients obtained for different values of  $n$  are reported in table 2.

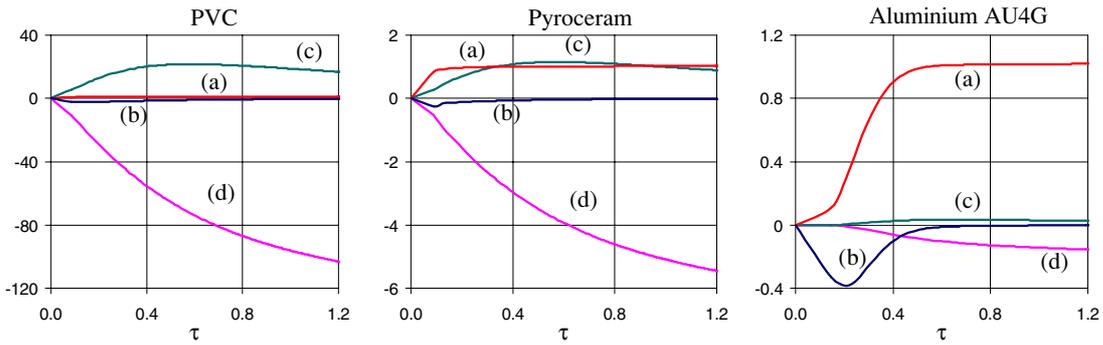
The  $c_0$  coefficient is equal to  $\frac{b_0}{2\sqrt{\pi}}$  and to 0 for an infinite number of resistive rings.

The deviation between  $D_n(\tau)$  values calculated with the polynomial whose coefficients are given in table 1, and those estimated from relation (10), whose coefficients are given in table 2, is below 0.5% for  $\tau > 0.05$ .

For a hot disc with a thermal capacitance  $mc$  and a contact resistance  $R_c$  between the hot disc and the sample, one can write the following matrix equation (Maillet *et al* 2000):

$$\begin{bmatrix} \theta(p) \\ \Phi(p) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ mcp & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & R_c \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_{se}(0, p) \\ \theta_{sc}(0, p)/Z_c \end{bmatrix}$$

where  $\theta$  is the Laplace transform of the hot disc mean temperature,  $\Phi$  is the Laplace transform of the hot disc flux,  $\theta_{se}$  is the Laplace transform of the mean temperature of the sample surface and  $\Phi_{sc}$  is the Laplace transform of the flux on the sample surface in contact with the hot disc.



**Figure 2.** Reduced sensitivities of the hot disc temperature to several parameters: (a)  $R_c$ ; (b)  $mc$ ; (c)  $a$ ; (d)  $\lambda$  for different materials—PVC:  $\lambda = 0.21 \text{ W m}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ,  $a = 1.7 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ; pyroceram:  $\lambda = 3.98 \text{ W m}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ,  $a = 1.89 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ; aluminium AU4G:  $\lambda = 138.5 \text{ W m}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ,  $a = 5.88 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ .

**Table 3.** Estimated parameter values for five tests on titanium TA6V.

Test	$r_0 = 3.189 \text{ mm}, n = 8$				
	$a \text{ (m}^2 \text{ s}^{-1}\text{)}$	$\lambda \text{ (W m}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}\text{)}$	$\rho c \text{ (J kg}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}\text{)}$	$R_c \text{ (}^\circ\text{C W}^{-1}\text{)}$	$mc \text{ (J }^\circ\text{C}^{-1}\text{)}$
1	$2.60 \times 10^{-6}$	6.46	$2.48 \times 10^6$	4.70	0.0037
2	$2.89 \times 10^{-6}$	6.64	$2.30 \times 10^6$	5.34	0.0030
3	$2.54 \times 10^{-6}$	6.50	$2.56 \times 10^6$	5.10	0.0027
4	$2.71 \times 10^{-6}$	6.41	$2.37 \times 10^6$	5.29	0.0033
5	$2.69 \times 10^{-6}$	6.61	$2.46 \times 10^6$	5.12	0.0044
Mean	$2.69 \times 10^{-6}$	6.52	$2.43 \times 10^6$	5.11	0.0034
Mean deviation (%)	4.4	1.3	4.2	4.4	17.3

One can deduce that

$$\theta(p) = \frac{\varphi_0}{p} \frac{Z_c + R_c}{Z_c mcp + mcRp + 1} \quad (12)$$

with  $Z_c = \frac{2}{\pi r_0 \lambda} I_n(p)$

### 3. Sensitivity analysis

Relation (12) allows the reduced sensitivity calculation of  $T(t)$  for the different parameters  $k_i$  by  $k_i \frac{\partial T}{\partial k_i} = 1000 [T(1, 001k_i) - T(k_i)]$  where  $T(t) = L^{-1}[\theta(p)]$  is calculated by relation (12).

This reduced sensitivity multiplied by 0.01 represents the absolute variation of  $T(t)$  for a relative variation of 1% of the parameter  $k_i$  from its initial value.

Relations (11) and (12) have been used to calculate the reduced sensitivities of  $T(t)$  to thermal diffusivity  $a$ , to thermal conductivity  $\lambda$ , to probe thermal capacity and to the contact resistance  $R_c$ . The following experimental conditions have been considered in calculations:

- Hot disc in Kapton; thickness = 0.2 mm, radius,  $r_0 = 6.401 \text{ mm}$ , the resistive spiral is assimilated to  $n = 16$  concentric resistive rings; thermal properties of Kapton: heat capacity =  $1.09 \times 10^6 \text{ J kg}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ , density =  $1420 \text{ kg m}^{-3}$  (Lua and Su 2006),
- Recording of 200 experimental points with a minimum time step of 0.015 s.

Reduced sensitivities obtained for different materials and calculated for  $R_c = 1.56 \text{ }^\circ\text{C W}^{-1}$ , that is to say  $S R_c = 2 \times 10^{-3} \text{ }^\circ\text{C m}^2 \text{ W}^{-1}$ , are plotted in figure 2. It can be noted that sensitivities to the contact resistance  $R_c$  and to the hot

disc thermal capacity  $mc$  become constant for  $\tau > 0.3$ . Thus, in this example, a simplified model that does not take into account the influence of  $R_c$  and  $mc$  can be used for parameter estimation only for  $\tau > 0.3$  which is in conformity with the estimation interval recommended:  $\tau \in [0.3, 1.0]$  (Bohac et al 2000). This minimal value  $\tau_{\min}$  becomes equal to 0.5 for materials with strong diffusivity as shown in the graph in figure 2 corresponding to aluminium AU4G.

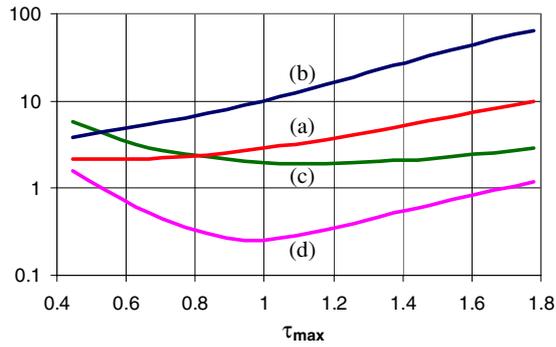
The thermal diffusivity sensitivity reaches a maximum for  $\tau = 0.5$  before decreasing whereas the thermal conductivity sensitivity is still growing continuously.

While the thermal diffusivity  $a$  and the thermal conductivity  $\lambda$  increase, one can note the following:

- Sensitivities to the thermal conductivity  $\lambda$  and to the thermal diffusivity  $a$  strongly decrease. In particular, the sensitivity to diffusivity becomes very low for highly conductive materials.
- The sensitivities to the contact resistance  $R_c$  and to the hot disc thermal capacity  $mc$  become constant only for  $\tau$  values higher than 0.5.

The first point implies that the hot disc method cannot make it possible to estimate high thermal diffusivities with precision. This is especially true when the parameter estimation is based on a simplified model that does not take into account the transitory effects of the thermal contact resistance  $R_c$  and of the hot disc thermal capacitance  $mc$ .

The standard deviations of estimation error, due to the measurement noise on  $T$ , have been estimated by taking the root of the diagonal terms of the matrix  $\sigma T^2 [X^T X]^{-1}$ , where  $X$  is the sensitivity matrix (Beck and Arnold 1977). The standard deviation  $\sigma T$  of error measurement on  $T(t)$  has been considered



**Figure 3.** Relative standard deviations (%) of estimation errors in different parameters versus  $\tau_{\max}$ . (a)  $R_c$ ; (b)  $mc$ ; (c)  $a$ ; (d)  $\lambda$ .

constant and equal to  $0.01\text{ }^\circ\text{C}$ , which is the average value observed during experimental records.

Figure 3 represents relative standard deviation values (in %) of the estimated parameters versus  $\tau_{\max}$  ( $\tau$  value of the last recorded point) for a 200 point temperature recording on titanium TA6V. It can be noted that the standard deviation in thermal diffusivity  $a$  and in thermal conductivity  $\lambda$  is minimum for  $\tau_{\max} = 1.0$ . This value is in conformity with the analysis of sensitivities curves (linear relation between the reduced sensitivities to  $\lambda$  and to  $a$  for  $\tau > 1.0$ ) and identical to that estimated by other authors (Bohac *et al* 2000).

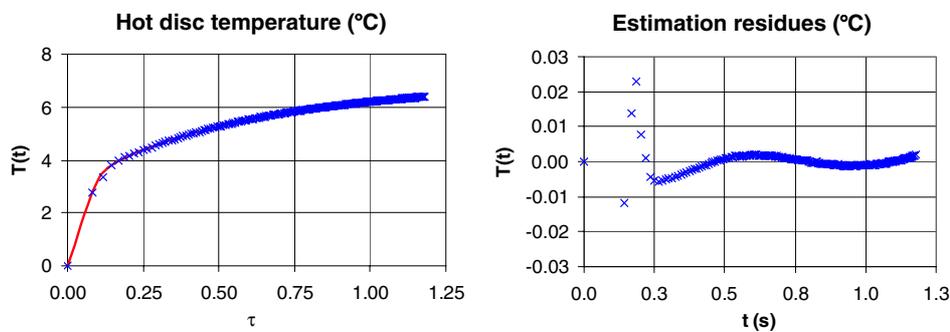
Moreover, in this case, it is noticeable that the standard deviation in thermal diffusivity is about 3–5 times higher than the standard deviation in thermal conductivity  $\lambda$ . This result is also in conformity with the analysis of the sensitivities curves and with the previous studies (Log and Gustafsson 1995).

#### 4. Experimental results and discussion

A first series of five measurements has been carried out with a hot disc of 3.189 mm radius (value given by the manufacturer) with  $n = 8$  concentric rings.

The tested material was titanium TA6V whose properties were measured by different methods:

- Hot plate method with two temperature measurements:  $\lambda = 6.61\text{ W m}^{-1}\text{ }^\circ\text{C}^{-1}$  and  $a = 2.70 \times 10^{-6}\text{ m}^2\text{ s}^{-1}$ .
- Flash method:  $a = 2.75 \times 10^{-6}\text{ m}^2\text{ s}^{-1}$ .
- Differential calorimeter: volume heat capacity =  $2.32 \times 10^6\text{ J }^\circ\text{C}^{-1}$ .



**Figure 4.** Hot disc temperature and estimation residues for a test on titanium TA6V.

The theoretical curve  $T(t)$  is calculated by applying the Stehfest method to relation (12) with  $n = 8$ . The Newton method is used to estimate the values of the parameters  $\lambda$ ,  $a$ ,  $mc$  and  $R_c$  minimizing the sum of the quadratic error between the theoretical and experimental curves. All the recorded values (200) of  $T(t)$  have been taken into account in this sum.

In the model, it has been shown that the coefficient  $c_0$  involved in the expression (11) of  $I_n(p)$  only produces a constant shift of the curve  $T(t)$ . It has been verified that its value does not have any influence on the optimal solution, thus it has been taken equal to zero. The obtained results for the five tests are reported in table 2.

The obtained average values of thermal diffusivity  $a$  and of thermal conductivity  $\lambda$  are very close (deviation lower than 1.3%) to those measured by hot plate and flash methods.

The comparison of the standard deviations observed in the various parameters produces a result in conformity with figure 3. The value of the volume heat capacity differs by about 4.7% from the one measured by differential calorimeter which is acceptable.

One can find in figure 4 an example of an experimental curve obtained on titanium TA6V under the following conditions:  $\varphi_0 = 0.7\text{ W}$ , recording of 200 points with a time step  $dt = 0.027\text{ s}$ .

The residues of the estimation that are the differences between the experimental and the modelled values of  $T(t)$  are also plotted in figure 4. These values are low, however higher values are observed for the first points. This can be explained by the fact that the variation in temperature is very fast at short times and that a small uncertainty in time measurement can cause a significant variation in temperature.

If the five first points are excluded, the standard deviation of the differences between the theoretical curve and the experimental one is about  $0.0035\text{ }^\circ\text{C}$ .

In the studied model, the effects of the conductive transfer within the Kapton located between the resistive rings are neglected. This conductive transfer will tend to bring the probe behaviour closer to that of a probe with a uniform flux corresponding to an infinite number of spirals. We have taken back the parameter estimation of the test whose results are presented in figure 4 by using function  $I_n(p)$  corresponding to  $n$  infinite. The following results are obtained:

- $n = 8$ :  $\lambda = 6.46\text{ W m}^{-1}\text{ }^\circ\text{C}^{-1}$  and  $a = 2.60\text{ m}^2\text{ s}^{-1}$
- $n = \infty$ :  $\lambda = 6.81\text{ W m}^{-1}\text{ }^\circ\text{C}^{-1}$  and  $a = 2.34\text{ m}^2\text{ s}^{-1}$ .

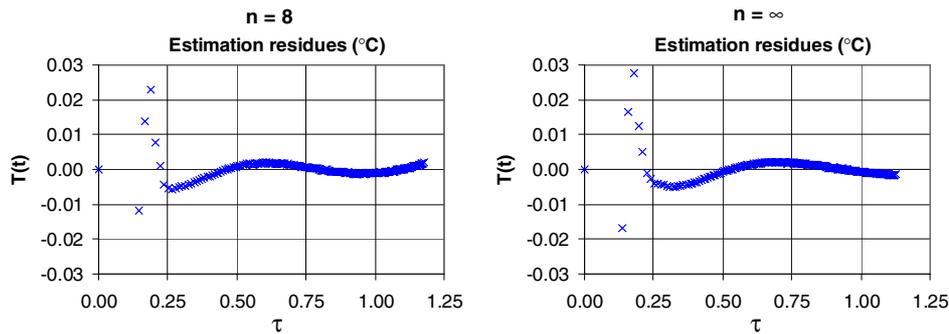


Figure 5. Estimation residues obtained with resistive ring numbers  $n = 8$  and  $n = \infty$ .

The differences between the estimated values with the two models ( $n = 8$  and  $n = \infty$ ) are, respectively, 5% for the thermal conductivity and 10% for the thermal diffusivity. The residues of estimations (previously defined) are similar for the two models as shown in figure 5, so that it is difficult to say that one estimation is more precise than the other.

The effective behaviour of the hot disc is between these two extreme cases. It becomes essential to obtain an experimental identification of function  $I_n(p)$  by a measurement on a reference sample in order to reach better precision in thermal properties estimation from a hot disc temperature record.

## 5. Conclusion

A quadrupolar model of the hot disc temperature taking into account the thermal contact resistance  $R_c$  and the probe thermal capacitance  $mc$  has been established. This model makes possible a sensitivity study which permits us to highlight the influence of the thermal contact resistance  $R_c$  and hot disc thermal capacity  $mc$  on the temperature  $T(t)$  for  $\tau$  values lower than  $\tau_{\min} = 0.3$ . This value of  $\tau_{\min}$  increases for very diffusive materials, which makes the estimation of the thermal diffusivity for these materials less accurate.

An experimental study has been carried out on a material characterized by three different methods: Flash method, hot plate method with two temperature measurements and a differential calorimeter device. The parameter estimation has been carried out by minimization of the sum of quadratic deviations between all the points of the experimental curve and the theoretical one using the Newton method. The estimated values of thermal conductivity  $\lambda$  and thermal diffusivity  $a$  are very close (maximum variation lower than 5%) to those estimated by other methods, these results thus validate the model and the proposed estimation method.

The purpose of this study also lies in the establishment of an explicit model, not requiring any choice of time interval for parameter estimation, providing an evaluation of the errors in the estimated value and leading to a satisfactory precision.

Furthermore, this study makes it possible to highlight uncertainties in the estimated values due to the model imperfections and shows the need for an experimental identification of the  $I_n$  function, which is a hot disc characteristic.

## References

- Beck J V and Arnold K J 1977 *Parameter Estimation in Engineering and Science* (New York: Wiley)
- Bohac V, Gustafsson M K, Kubicar L and Gustafsson S E 2000 Parameter estimations for measurements of thermal transport properties with the hot disk thermal constants analyzer *Rev. Sci. Instrum.* **71** 2452–5
- Gustafsson S E 1991 Transient plane source techniques for thermal conductivity and thermal diffusivity measurements of solid materials *Rev. Sci. Instrum.* **62** 797–804
- He Y 2005 Rapid thermal conductivity measurement with a hot disk sensor: Part 1. Theoretical considerations *Thermochem. Acta* **436** 122–9
- Hladik J 1990 *Métrologie des propriétés thermophysiques des matériaux* (Paris: Masson)
- Log T and Gustafsson S E 1995 Transient plane source (TPS) technique for measuring thermal transport properties of building materials *Fire Mater.* **19** 43–9
- Lua A C and Su J 2006 Isothermal and non-isothermal pyrolysis kinetics of Kapton<sup>®</sup> polyimide *Polym. Degrad. Stability* **91** 144–53
- Maillet D, André A, Batsale J-C, Degiovanni A and Moyne C 2000 *Thermal Quadrupoles* (New York: Wiley)
- Malinaric S 2004 Parameter estimation in dynamic plane source method *Meas. Sci. Technol.* **15** 807–13
- Stehfest H 1970 Numerical inversion of Laplace transform *Commun. ACM* **13** 47–9

***Nouveaux composites graphite/sel destinés au stockage de l'énergie thermique à haute température : De l'élaboration au développement de méthodes de caractérisation thermique de matériaux conducteurs orthotropes.***

***Résumé :***

Cette thèse a été effectuée dans le cadre des projets DISTOR (Européen) et HTPSTOCK (Français) qui visent à concevoir et étudier de nouveaux composites graphite/sel destinés au stockage de l'énergie thermique à haute température (>200°C). Elle est scindée en deux parties distinctes.

La première partie détaille les travaux relatifs à l'élaboration et la caractérisation thermique de ces nouveaux composites. On y présente les différentes voies d'élaboration des composites (dispersion, compression uniaxiale, isostatique) associées aux différents types de graphite (graphite naturel expansé (GNE), graphite synthétique) investigués au cours de cette thèse. On y retrouve également les résultats liés à la campagne de caractérisation thermique de ces composites permettant de mettre en exergue l'impact du graphite sur les propriétés conductrices des matériaux étudiés. A partir de ces résultats, des études de modélisation de l'évolution de la conductivité thermique ont pu être entreprises afin d'approfondir la compréhension de l'effet du graphite (quantité, taille de particules) sur la conductivité effective des composites.

La deuxième partie présente essentiellement les dispositifs de caractérisation thermique et les modèles thermocinétiques associés qui ont dû être développés et adaptés aux spécificités des matériaux nouvellement élaborés. Cela concerne principalement les matériaux élaborés par compression, matériaux difficilement reproductible et possédant des propriétés orthotropes. La caractérisation de ce type de matériaux s'avère très délicate et pour le moins fastidieuse. C'est pourquoi nous nous sommes attachés à développer et adapter les moyens de caractérisation existants afin de permettre la caractérisation thermique complète d'un matériau conducteur orthotrope à partir d'une seule mesure sur un seul échantillon.

***Mots clés :*** *Stockage d'énergie à haute température, Matériaux à Changement de Phase (MCP) (sel), graphite, Métrologie thermique (disque chaud, plan chaud), Estimation de paramètres, Conductivité thermique.*

***New composites graphite/salt for high temperature thermal energy storage : From elaboration to development of thermal characterization methods for orthotropic conductive materials.***

***Abstract :***

This PhD is carried out within the framework of DISTOR (European) and HTPSTOCK (French) projects, which have for objective to conceive and study new graphite/salt composites dedicated to high temperature energy storage (>200°C). She is split into two distinct part.

The first one focused mainly on works linked with elaboration and thermal characterisation of these new composites. The different composites ways of elaboration (Dispersion, uniaxial compression, isostatic) associated to the different kind of graphite (Natural expanded graphite (ENG), synthetic graphite) investigated during the PhD are presented. The results of the thermal characterization campaign of these composites are also presented and permit to highlight the impact of graphite in the thermal behaviour of studied materials. Based on these results, modelling studies of the evolution of the thermal conductivity have been undertaken to deepen the understanding of the effect of graphite (quantity, size of particles) on the effective conductivity composites.

The second one describes the thermal characterization devices and associated thermo-kinetics models which had to be developed and adapted to the specificities of newly developed materials. This concerns mainly the materials prepared by compression, which present orthotropic properties and are difficult to reproduce. So, the characterization of this kind of material is very difficult and tedious. That is why we are committed to develop and adapt existing methods of characterization to allow the complete thermal characterisation of an orthotropic conductive material from a single experimentation on a single sample.

***Key words:*** *High temperature energy storage, Phase changing materials (salt) (PCM), graphite, Thermal metrology (hot plate, hot disk), Parameters estimation, Thermal conductivity.*